

明細書

有機エレクトロルミネッセンス素子、表示装置および照明装置

5 技術分野

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子ということもある）、表示装置および照明装置に関する。

背景技術

10 従来、発光型の電子ディスプレイデバイスとして、エレクトロルミネッセンスディスプレイ（ELD）がある。ELDの構成要素としては、無機エレクトロルミネッセンス素子や有機エレクトロルミネッセンス素子が挙げられる。無機エレクトロルミネッセンス素子は平面型光源として使用されてきたが、発光素子を駆動させるためには交流の高電圧が必要である。

15 一方、有機エレクトロルミネッセンス素子は、発光する化合物を含有する発光層を、陰極と陽極で挟んだ構成を有し、発光層に電子および正孔を注入して、再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出（蛍光・リン光）を利用して発光する素子であり、数V～数十V程度の電圧で発光が可能であり、

20 さらに、自己発光型であるために視野角に富み、視認性が高く、薄膜型の完全固体素子であるために省スペース、携帯性等の観点から注目されている。

今後の実用化に向けた有機エレクトロルミネッセンス素子の開発としては、さらに低消費電力で効率よく高輝度に発光する有機エレクトロルミネッセンス素子が望まれているわけであり、例えば、スチルベン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体又はトリススチリルアリーレン誘導体
5 に、微量の蛍光体をドーピングし、発光輝度の向上、素子の長寿命化を達成する技術（例えば、特許文献1参照。）、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これに微量の蛍光体をドーピングした有機発光層を有する素子（例えば、特許文献2参照。）、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これにキナクリド
10 ン系色素をドーピングした有機発光層を有する素子（例えば、特許文献3参照。）等が知られている。

上記文献に開示されている技術では、励起一重項からの発光を用いる場合、一重項励起子と三重項励起子の生成比が1 : 3であるため発光性励起種の生成確率が25%であることと、光の取り出し効率が約20%
15 であるため、外部取り出し量子効率（ η_{ext} ）の限界は5%とされている。

ところが、プリンストン大より、励起三重項からのリン光発光を用いる有機エレクトロルミネッセンス素子の報告（例えば、非特許文献1参照。）がされて以来、室温でリン光を示す材料の研究が活発になってき
20 ている（例えば、非特許文献2および特許文献4参照。）。

励起三重項を使用すると、内部量子効率の上限が100%となるため、励起一重項の場合に比べて原理的に発光効率が4倍となり、冷陰極管とほぼ同等の性能が得られ照明用にも応用可能であり注目されている。

例えば、多くの化合物がイリジウム錯体系など重金属錯体を中心に合成検討されている（例えば、非特許文献 3 参照。）。

又、ドーパントとして、トリス（2-フェニルピリジン）イリジウムを用いた検討がされている（例えば、非特許文献 2 参照。）。

5 その他、ドーパントとして $L_2Ir(acac)$ （ここで L は 2 座の配位子、 $acac$ はアセチルアセトンを表す）、例えば $(ppy)_2Ir(acac)$ （例えば、非特許文献 4 参照。）を、又、ドーパントとして、トリス（2-（p-トリル）ピリジン）イリジウム（ $Ir(ptpy)_3$ ）、トリス（ベンゾ[h]キノリン）イリジウム（ $Ir(bzq)_3$ ）、 $Ir(bzq)_2ClP(Bu)_3$ 等を用いた検討（例えば、
10 非特許文献 5 参照。）が行われている。

又、高い発光効率を得るために、正孔輸送性の化合物をリン光性化合物のホストとして用いている（例えば、非特許文献 6 参照）。

また、各種電子輸送性材料をリン光性化合物のホストとして、これら
15 に新規なイリジウム錯体をドーブして用いている（例えば、非特許文献 4 参照）。さらに、ホールブロック層の導入により高い発光効率を得ている（例えば、非特許文献 5 参照。）。

しかし、緑色発光については理論限界である 20% 近くの外部取り出し効率が達成されているものの、とくに高輝度発光時における効率の大幅な低下という問題があり、またその他の発光色については未だ十分な
20 効率が得られておらず改良が必要であり、例えば高効率な青色発光を実現する有機エレクトロルミネッセンス素子の検討の例として、特許文献 5 を挙げるができる。加えて今後の実用化に向けた有機エレクトロ

ルミネッセンス素子では、さらに低消費電力で効率よく高輝度に発光する有機エレクトロルミネッセンス素子の開発が望まれている。

有機EL素子に用いられるリン光性ドーパントについては、これまでも特許文献6、7、8、9、10、11等、非常に多くの開示がある。

- 5 これらの開示の多くは高い発光効率や、高い色純度、優れた耐久性を目的としている。しかしながら現在までのところ、有機EL素子に用いられるリン光性ドーパント化合物として要求される諸要素について未だ充分とはいえず、さらなる改良が求められている。

- 一方、有機EL素子を大面積化するにあたり、低分子化合物を用いた
10 有機EL素子の作製において一般的である真空蒸着法による製造は、設備やエネルギー効率の面で問題があることが知られており、インクジェット法やスクリーン印刷法などを含む印刷法もしくはスピコートあるいはキャストコートといった塗布法が望ましいと考えられている。また、
15 例えば白色発光素子を作製する際には異なる発光極大波長をもつ複数の発光性化合物を発光層に設置しなければならないが、とくにリン光発光素子の場合、真空蒸着法で複数のリン光性ドーパントを毎回同じ比率で蒸着することは困難であり、製造時の歩留まりに問題の出ることが予想されるが、溶剤溶解性に優れた材料を用いて前記印刷法や塗布法による有機EL素子の作製が可能となれば、リン光性ドーパントを同じ比率で
20 混合した溶液を調製することによって、製造されるいずれの有機EL素子に対しても同じ比率のリン光性ドーパントを含有せしめることができ、同じ発光色の白色発光有機EL素子を安定的に作製することが可能となる。

例えば、ポリフェニレンビニレン誘導体（P P V）、ポリアルキルフルオレン誘導体（P A F）等の高分子である発光体（例えば、非特許文献 7、8 参照）や、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリビニルカルバゾール（P V K）等の高分子中に低分子の発光色素を分散又は溶解させる技術（例えば、特許文献 1 2、非特許文献 9 参照）が知られている。

また、ビニルカルバゾール重合体とイリジウム錯体の共重合体が非常に優れた有機 E L 素子となることが報告されている（例えば、非特許文献 1 0 参照）。

10 【特許文献 1】

特許第 3 0 9 3 7 9 6 号明細書

 【特許文献 2】

特開昭 6 3 - 2 6 4 6 9 2 号公報

 【特許文献 3】

15 特開平 3 - 2 5 5 1 9 0 号公報

 【特許文献 4】

米国特許第 6 0 9 7 1 4 7 号公報

 【特許文献 5】

特開 2 0 0 2 - 1 0 0 4 7 6 号公報

20 【特許文献 6】

特開 2 0 0 1 - 1 8 1 6 1 6 号公報

 【特許文献 7】

特開 2 0 0 1 - 2 4 7 8 5 9 号公報

【特許文献 8】

特開 2002-83684 号公報

【特許文献 9】

特開 2002-175884 号公報

5 【特許文献 10】

特開 2002-338588 号公報

【特許文献 11】

特開 2003-7469 号公報

【特許文献 12】

10 特開平 4-212286 号公報

【非特許文献 1】

M. A. Baldo et al., nature、395 卷、
151-154 ページ (1998 年)

【非特許文献 2】

15 M. A. Baldo et al., nature、403 卷、
17 号、750-753 ページ (2000 年)

【非特許文献 3】

S. Lamansky et al., J. Am. Chem.
Soc., 123 卷、4304 ページ (2001 年)

20 【非特許文献 4】

M. E. Thompson et al., The 10th I
n t e r n a t i o n a l W o r k s h o p o n I n
o r g a n i c a n d O r g a n i c E l e c t r o

l u m i n e s c e n

c e (E L' 00、浜松)

【非特許文献 5】

5 M o o n - J a e Y o u n . O g , T e t s u o T s u t
 s u i e t a l . , T h e 1 0 t h I n t e r n a t i
 o n a l W o r k s h o p o n I n o r g a n i c
 a n d O r g a n i c E l e c t r o l u m i n e s c
 e n c e (E L' 00、浜松)

【非特許文献 6】

10 I k a i e t a l . , T h e 1 0 t h I n t e r n a
 t i o n a l W o r k s h o p o n I n o r g a n i
 c a n d O r g a n i c E l e c t r o l u m i n e
 s c e n c e (E L' 00、浜松)

【非特許文献 7】

15 N a t u r e , V o l . 3 5 7 , 4 7 7 , 1 9 9 2 年

【非特許文献 8】

 アドバンスドマテリアルズ、4 項、1 9 9 2 年

【非特許文献 9】

 第 3 8 回応用物理学関係連合講演会予稿集 3 1 p - G - 1 2 、
20 1 9 9 1 年

【非特許文献 1 0】

 平成 1 5 年度 NHK 放送技研公開予稿集 P 5 2 ~ 5 7

 しかしながら、従来の有機 EL 素子では、発光輝度、発光効率、発光

寿命、駆動電力において、十分に満足のできる性能が得られていなかった。

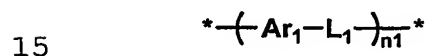
本発明は、かかる課題に鑑みてなされたものであり、本発明の目的は、
 高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに駆動電力が抑えられ
 5 た有機エレクトロルミネッセンス素子、およびそれを具備してなる表示
 装置もしくは照明装置を提供することである。

発明の開示

本発明の目的は下記構成により達成される。

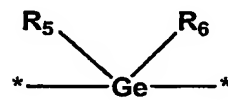
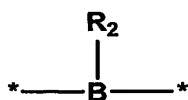
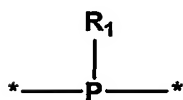
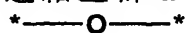
- 10 (1) 陰極と陽極との間に有機層を少なくとも1層有する有機エ
 レクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層の少なくとも1層に、
 下記一般式(1)で表される繰り返し単位を少なくとも一つ含む重合体
 を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(1)



[式中、 Ar_1 は置換基を有していてもよいアリーレン基又はヘテロアリーレン基を表し、ヘテロアリーレン基のヘテロ原子の数は2以下である。 L_1 は下記連結基群1から選ばれるいずれかの連結基を表す。 n_1 は2以上の整数を表す。]

20 連結基群 1



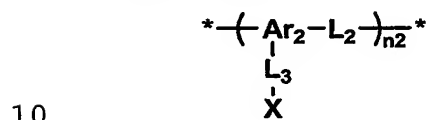
[$R_1 \sim R_6$ は、各々独立に、アルキル基又はアリール基を表し、 R_3 と

R_4 、 R_5 と R_6 は互いに連結して環を形成してもよい。]

(2) 前記一般式(1)の Ar_1 は環数が5以下であることを特徴とする前記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

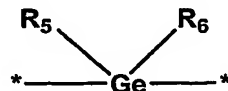
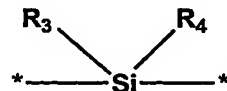
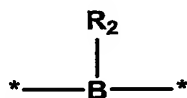
(3) 陰極と陽極との間に有機層を少なくとも1層有する有機エ
5 レクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層の少なくとも1層に
下記一般式(2)のいずれかで表される繰り返し単位を少なくとも一つ
含む重合体を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス
素子。

一般式(2)

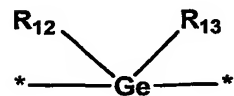
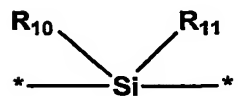
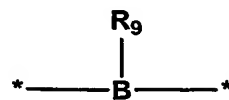
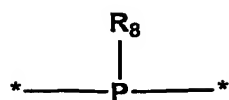
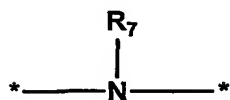
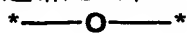


[式中、 Ar_2 は置換基を有していてもよいアリーレン基又はヘテロア
アリーレン基を表し、ヘテロアリーレン基のヘテロ原子の数は2以下であ
る。 L_2 は下記連結基群2から選ばれるいずれかの連結基を表し、 L_3 は、
単なる結合手、又は下記連結基群3から選ばれるいずれかの連結基を表
15 し、 X は、正孔輸送性基、電子輸送性基、蛍光性基、リン光性基のいず
れかを表す。 n_2 は2以上の整数を表す。]

連結基群2



連結基群 3



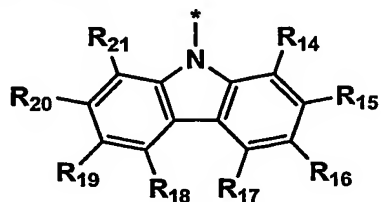
〔 $\text{R}_1 \sim \text{R}_6$ は、各々独立に、アルキル基又はアリール基を表し、 R_3 と R_4 、 R_5 と R_6 は互いに連結して環を形成してもよい。

- 5 $\text{R}_7 \sim \text{R}_{13}$ は、各々独立に、アルキル基又はアリール基を表し、 R_{10} と R_{11} 、 R_{12} と R_{13} は互いに連結して環を形成してもよい。〕

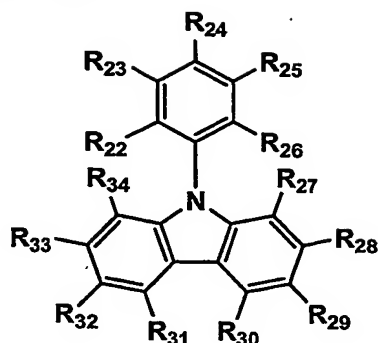
(4) 前記一般式(2)の Ar_2 は環数が5以下であることを特徴とする前記3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

- (5) 前記正孔輸送性基が下記一般式(3)又は一般式(4)で表される部分構造を有することを特徴とする前記3または4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(3)



一般式 (4)



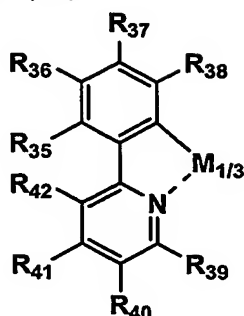
〔一般式 (3) において、 $R_{14} \sim R_{21}$ は、各々独立に、水素原子、アルキル基、又はシクロアルキル基を表す。また、 $R_{14} \sim R_{21}$ の隣接する基同士で結合して環を形成していてもよい。

一般式 (4) において、 $R_{22} \sim R_{30}$ は、各々独立に、水素原子、アルキル基、又はシクロアルキル基を表し、 $R_{31} \sim R_{34}$ は、各々独立に、水素原子、結合手、アルキル基、又はシクロアルキル基を表し、 $R_{31} \sim R_{34}$ のいずれか 1 つが結合手を表す。また、 $R_{22} \sim R_{34}$ の隣接する基同士で結合して環を形成していてもよい。〕

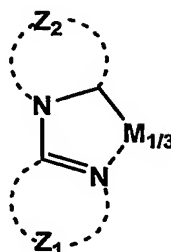
(6) 前記リン光性基が、有機金属錯体を含む基であることを特徴とする前記 3 ～ 5 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

(7) 前記有機金属錯体が、下記一般式 (5) ～ (8) のいずれかで表される部分構造を有することを特徴とする前記 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

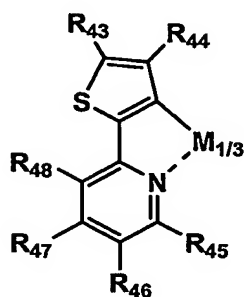
一般式 (5)



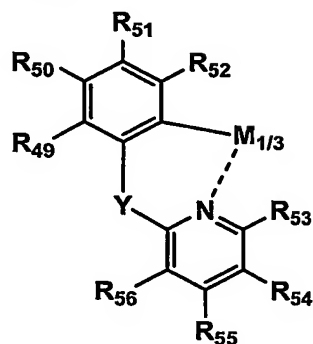
一般式 (6)



一般式 (7)



一般式 (8)



- 5 〔一般式 (5) において、 $R_{35} \sim R_{42}$ は、各々独立に、水素原子、結合手、又は置換基を表し、 $R_{35} \sim R_{42}$ の隣接する基同士で結合して環を形成していてもよい。M は、金属原子を表す。

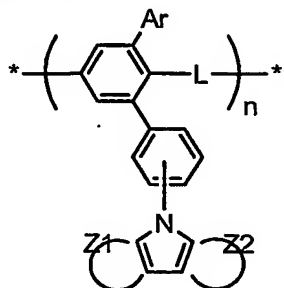
一般式 (6) において、 Z_1 、 Z_2 は、各々独立に、炭素原子、窒素原子とともに芳香環を形成するのに必要な原子群を表す。M は、金属原子を表す。

一般式 (7) において、 $R_{43} \sim R_{48}$ は、各々独立に、水素原子、結合手、又は置換基を表し、 $R_{43} \sim R_{48}$ の隣接する基同士で結合して環を形成していてもよい。M は、金属原子を表す。

- 15 一般式 (8) において、Y は 2 価の連結基を表し、 $R_{49} \sim R_{56}$ は、各々独立に、水素原子、結合手、又は置換基を表し、 $R_{49} \sim R_{56}$ の隣接する基同士で結合して環を形成していてもよい。M は、金属原子を表す。〕

(8) 前記一般式(2)のいずれかで表される繰り返し単位が、下記一般式(21)で表される繰り返し単位であることを特徴とする前記3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

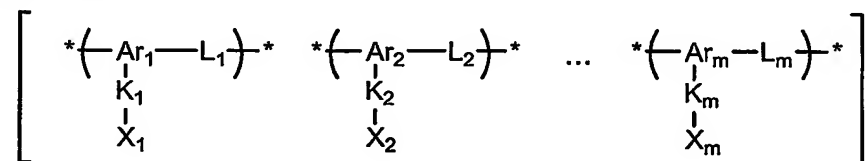
一般式(21)



[Arは置換基を有しても良いアリーレン基又はヘテロアリーレン基を表す。Z₁、Z₂は炭素原子、水素原子、窒素原子のいずれかの原子群からなる6員の芳香環を表す。(Z₁、Z₂は異なっても構わない)]

(9) 陰極と陽極との間に有機層を少なくとも1層有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層の少なくとも1層に下記一般式(22)で表される共重合体を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(22)



[式中、Ar₁からAr_mは置換基を有しても良いアリーレン基又はヘテロアリーレン基を表し、mは2以上の整数を表し、Ar₁からAr_mは全て同じでも、異なっても良い。ヘテロアリーレン基のヘテロ原子の数は2以下である。L₁からL_mは酸素原子又は硫黄原子を表し、全て同

じ原子でも、異なった原子でも良い。K₁からK_mは単なる結合または上記連結基群3から選ばれるいずれかの連結基を表し、X₁からX_mは正孔輸送性基、電子輸送性基、リン光性基のいずれかを表す。]

(10) 陰極と陽極との間に有機層を少なくとも1層有する有機エ

5 レクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層の少なくとも1層に上記一般式(1)、(2)、(21)および(22)で表される重合体のうち、少なくとも2種類以上を混合することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

(11) 白色に発光することを特徴とする前記1～10のいずれか1

10 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

(12) 前記1～11のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。

(13) 前記1～11のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

15 (14) 前記13に記載の照明装置と、表示手段として液晶素子と、を備えたことを特徴とする表示装置。

図面の簡単な説明

第1図は有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図
20 である。

第2図は表示部の模式図である。

第3図は画素の模式図である。

第4図はパッシブマトリクス方式フルカラー表示装置の模式図である。

第 5 図は照明装置の概略図である。

第 6 図は照明装置の断面図である。

発明を実施するための最良の形態

5 以下、本発明についてさらに詳しく説明する。

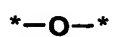
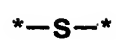
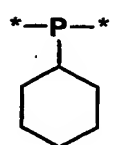
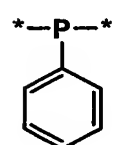
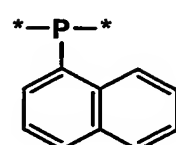
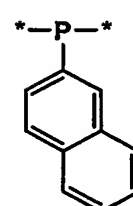
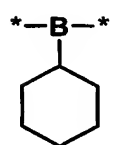
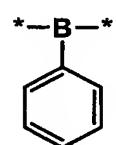
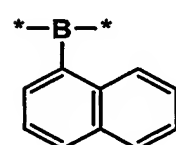
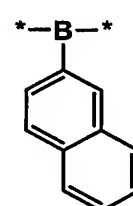
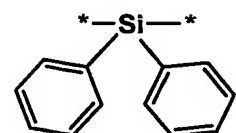
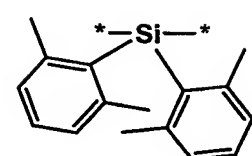
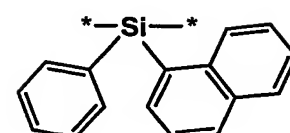
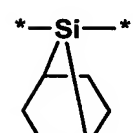
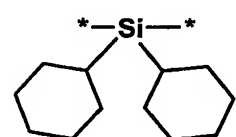
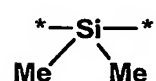
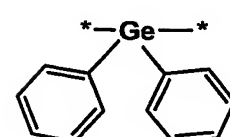
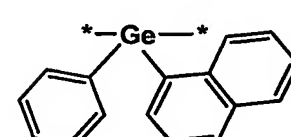
本発明者らは鋭意検討の結果、陰極と陽極との間に有機層を少なくとも 1 層有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、この有機層の少なくとも 1 層に前記一般式 (1) で表される繰り返し単位を少なくとも一つ含む重合体を含有させることで、高い発光輝度、発光効率、発
10 光寿命を有し、さらに駆動電力が抑えられた有機エレクトロルミネッセンス素子とすることができることを見出した。

前記一般式 (1) において、 Ar_1 は置換基を有していてもよいアリーレン基又はヘテロアリーレン基を表し、ヘテロアリーレン基のヘテロ原子の数は 2 以下である。 L_1 は前記連結基群 1 から選ばれるいずれかの連結基を表す。 n_1 は 2 以上の整数を表す。
15

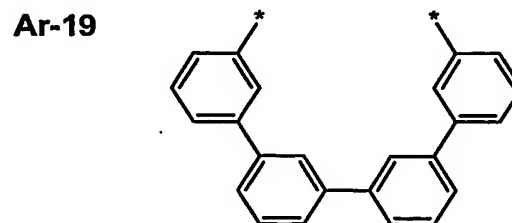
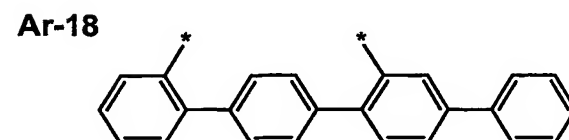
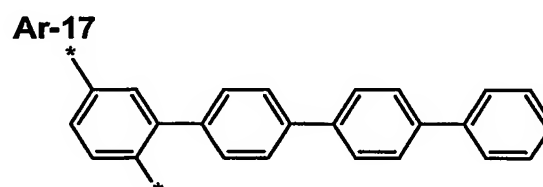
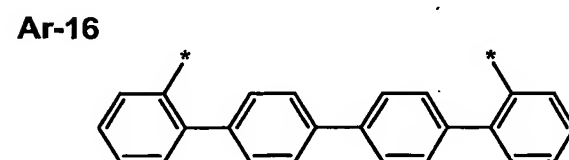
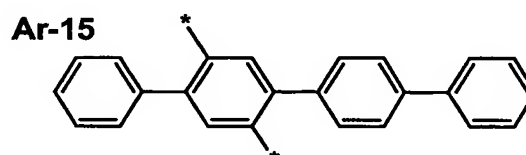
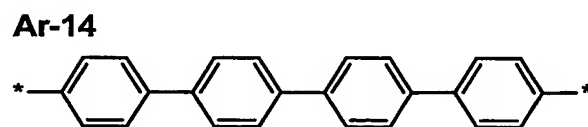
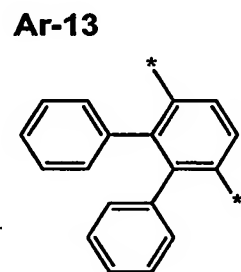
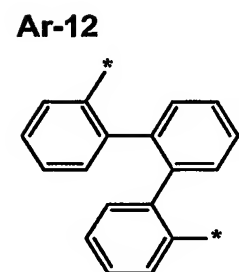
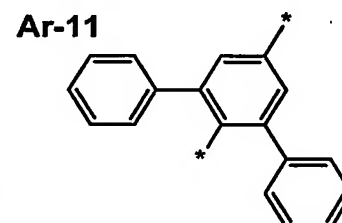
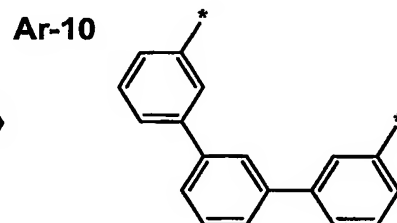
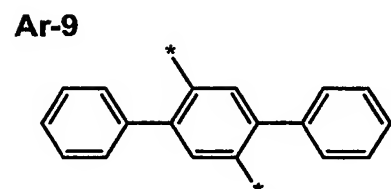
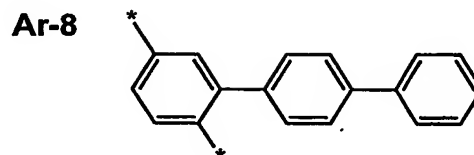
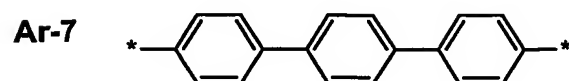
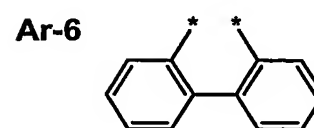
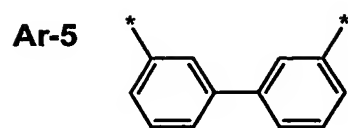
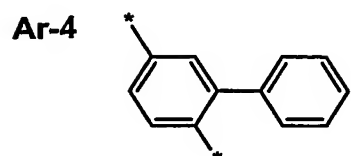
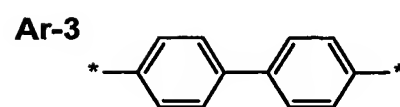
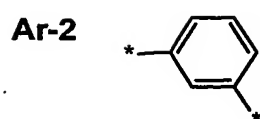
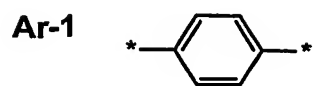
前記連結基群 1 において、 $R_1 \sim R_6$ は、各々独立に、アルキル基又はアリール基を表し、 R_3 と R_4 、 R_5 と R_6 は互いに連結して環を形成してもよい。

連結基群 1 の中でも、特に O 原子、S 原子、Se 原子、Si 原子で連結される連結基が本発明の効果をj得る上で特に好ましく、最も好ましくは O 原子又は S 原子で連結されたものである。
20

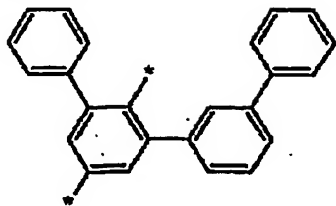
以下に前記連結基群 1 の例を示すが、本発明の態様がこれによって限定されるものではない。

L₁-1**L₁-2****L₁-3****L₁-4****L₁-5****L₁-6****L₁-7****L₁-8****L₁-9****L₁-10****L₁-11****L₁-12****L₁-13****L₁-14****L₁-15****L₁-16****L₁-17****L₁-18****L₁-19****L₁-20**

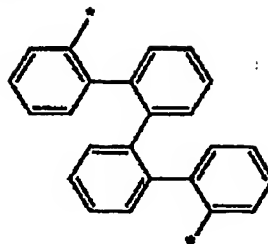
以下に前記一般式(1)のAr₁の例を示すが、本発明の態様がこれによって限定されるものではない。



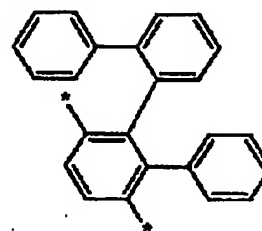
Ar-20



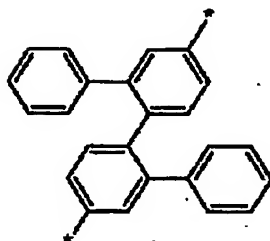
Ar-21



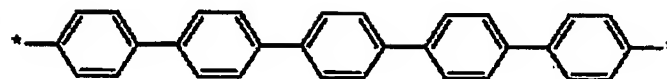
Ar-22



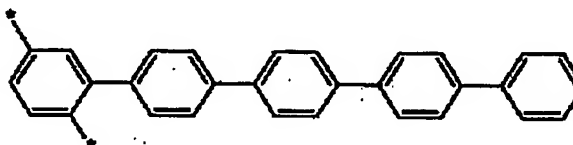
Ar-23



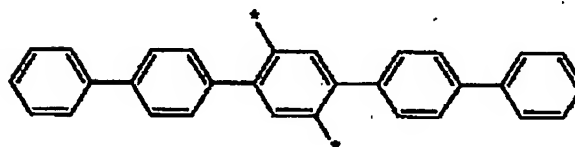
Ar-24



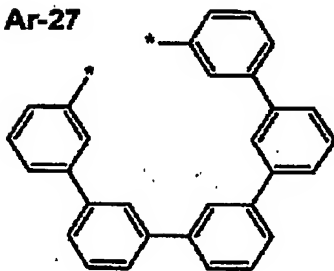
Ar-25



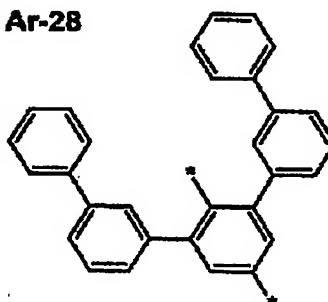
Ar-26



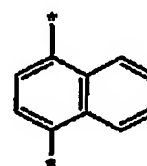
Ar-27



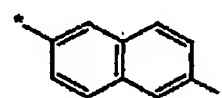
Ar-28



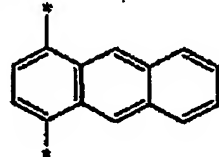
Ar-29



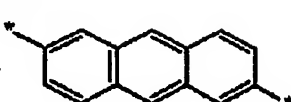
Ar-30



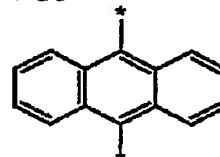
Ar-31



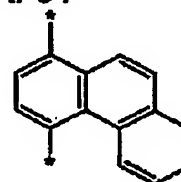
Ar-32



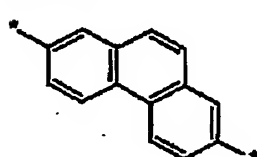
Ar-33



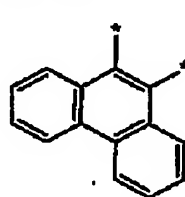
Ar-34



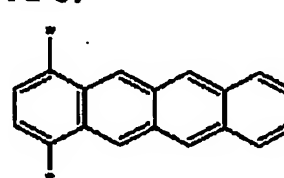
Ar-35



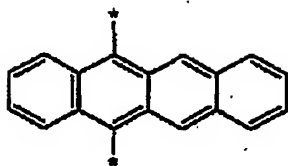
Ar-36



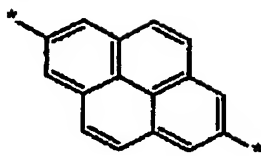
Ar-37



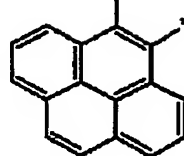
Ar-38



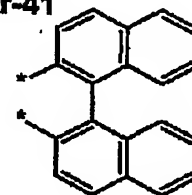
Ar-39



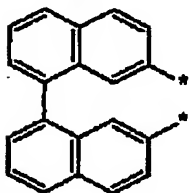
Ar-40



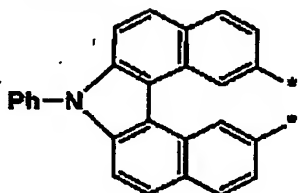
Ar-41



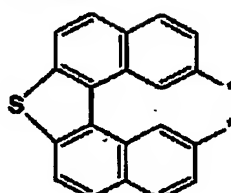
Ar-42



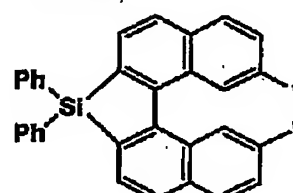
Ar-43



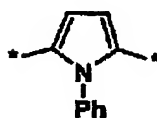
Ar-44



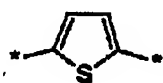
Ar-45



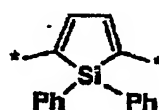
Ar-46



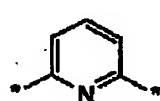
Ar-47



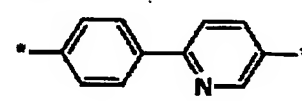
Ar-48



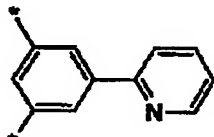
Ar-49



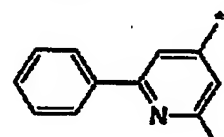
Ar-50



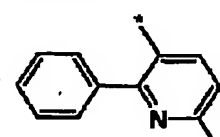
Ar-51



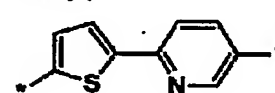
Ar-52



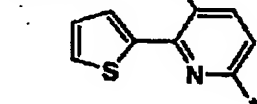
Ar-53



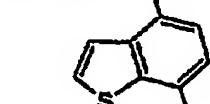
Ar-54



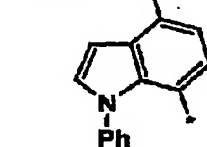
Ar-55



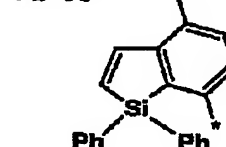
Ar-56



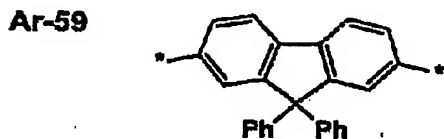
Ar-57



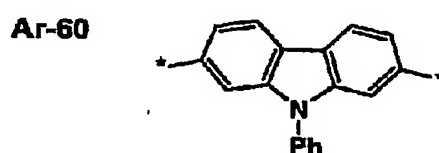
Ar-58



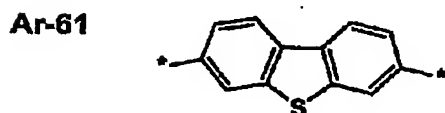
Ar-59



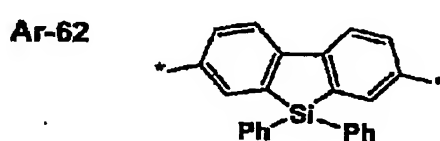
Ar-60



Ar-61



Ar-62



前記一般式(1)の Ar_1 は環数が5以下であることが好ましく、これにより、一層高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに一層

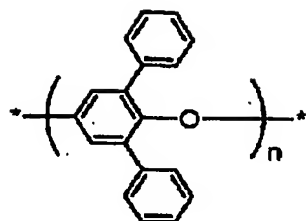
駆動電力を抑えることができる。

本発明において、環数とは芳香環およびヘテロ芳香環 1 つを 1 と数え、
n 個の芳香環およびヘテロ芳香環からなるアリーレン基およびヘテロア
アリーレン基の環数は n となる。また、縮合環の場合は、縮合環の数を示
5 し、n 個の環からなる縮合環の環数は n となる。例えば、Ar-3 ~ Ar-
Ar-6、Ar-29、Ar-30、Ar-50 ~ Ar-58 は環数 2、
Ar-7 ~ Ar-13、Ar-31 ~ Ar-36、Ar-59 ~ Ar-
62 は環数 3、Ar-14 ~ Ar-23、Ar-37 ~ Ar-42 は環
数 4、Ar-24 ~ Ar-28、Ar-43 ~ Ar-45 は環数 5 と数
10 える

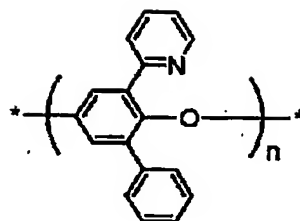
また前記一般式 (1) で表される繰り返し単位を有する少なくとも一
つ含む重合体の両末端の構造については特に制限するものではないが、
水素原子、アルキル基、置換基を有しても良いアリール基などでキャッ
プすることが好ましく、有機 EL 素子としての機能上の観点から正孔阻
15 止性基、後述する蛍光性基又はリン光性基によってキャップすることが
より好ましい。

正孔阻止性基としては、電子を輸送しつつ正孔を阻止することで電子
と正孔の再結合確率を向上させることができる能力を持つもの、すなわ
ち電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さいと
20 いう特徴を有していれば使用できるが、スチリル化合物、トリアゾール
誘導体、フェナントロリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、トリアリ
ールボラン誘導体の部分構造を有する基があげられる。具体的には後述
する電子輸送性基のものをを用いることができる。

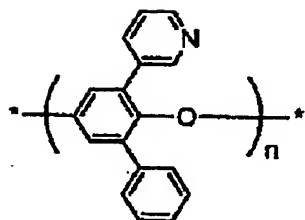
前記一般式（１）で表される繰り返し単位を少なくとも一つ含む重合体の例としては、上述した例を組み合わせた重合体が挙げられるが、以下に前記一般式（１）で表される繰り返し単位を少なくとも一つ含む重合体の特に好ましい例を示す。しかしながら、本発明の態様がこれによって限定されるものではない。



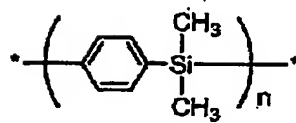
PO-1



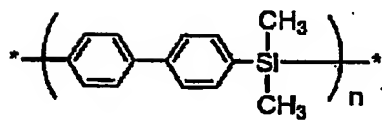
PO-2



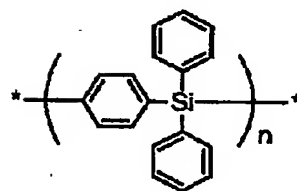
PO-3



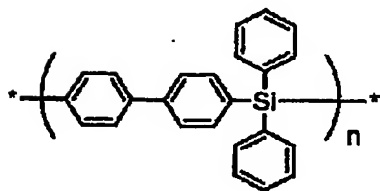
PO-4



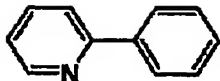
PO-5

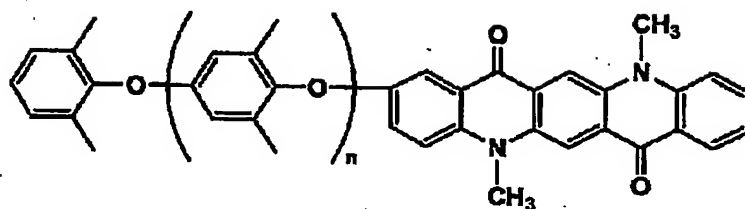
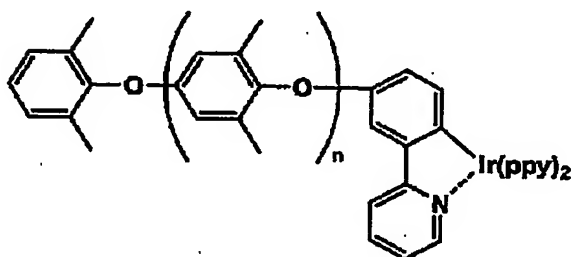
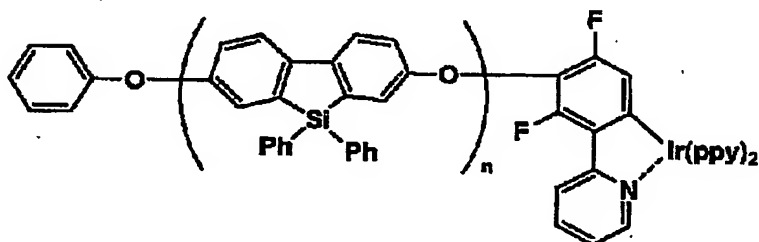
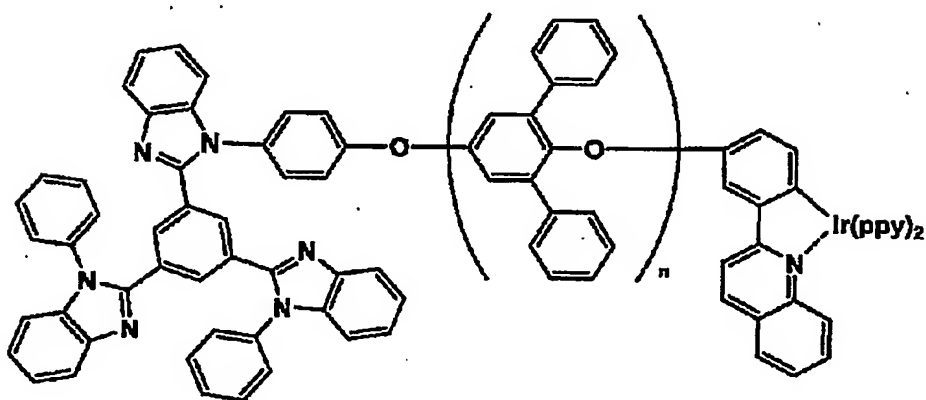


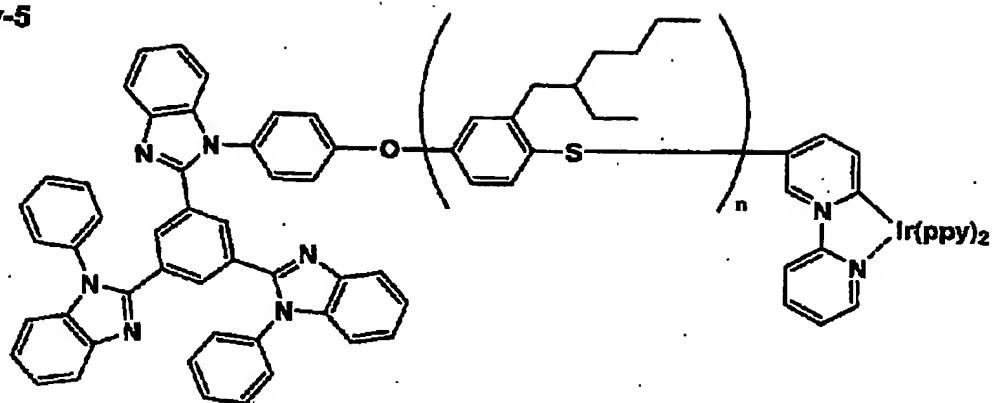
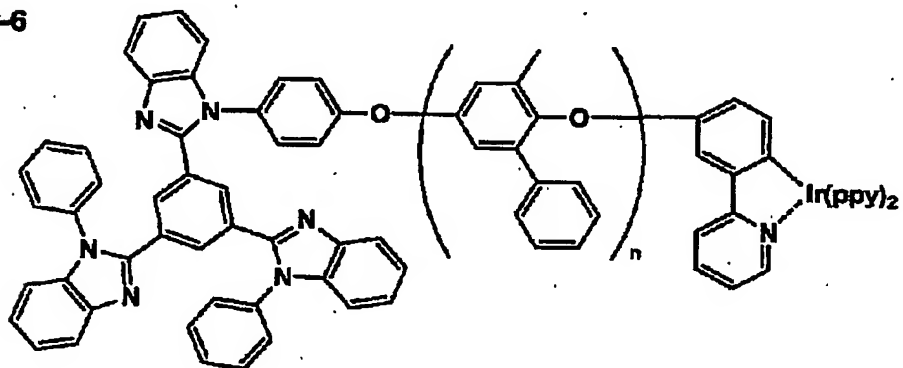
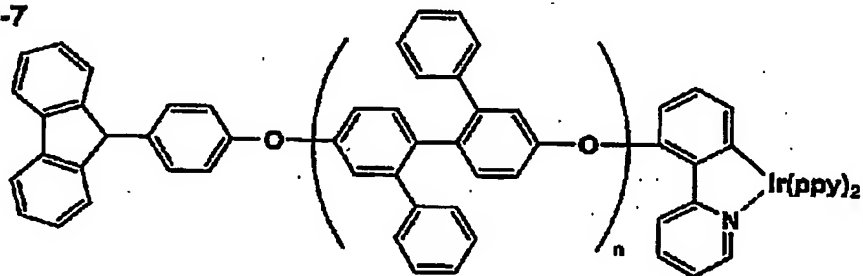
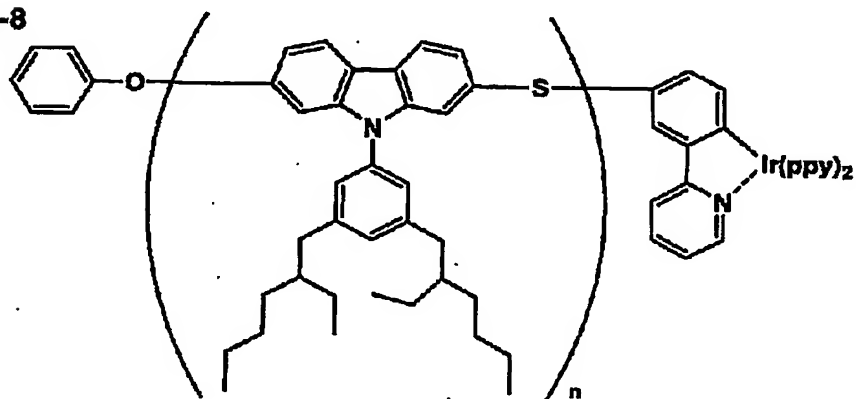
PO-6

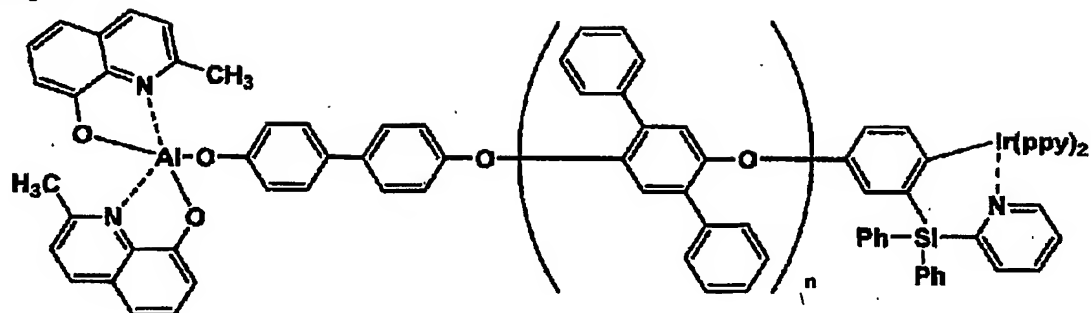
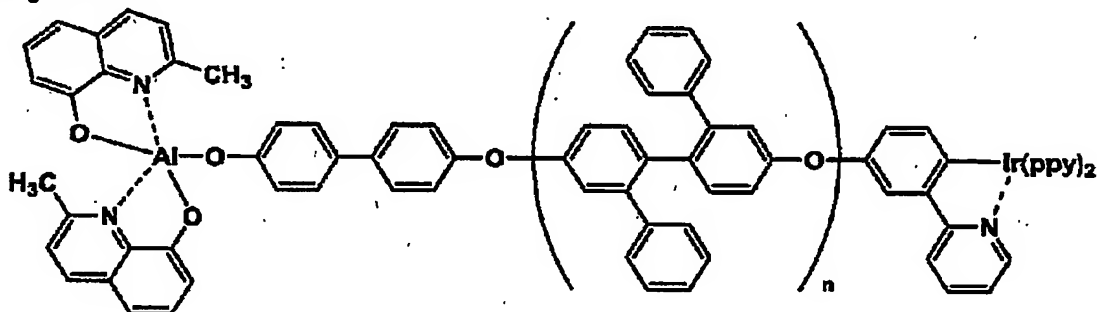
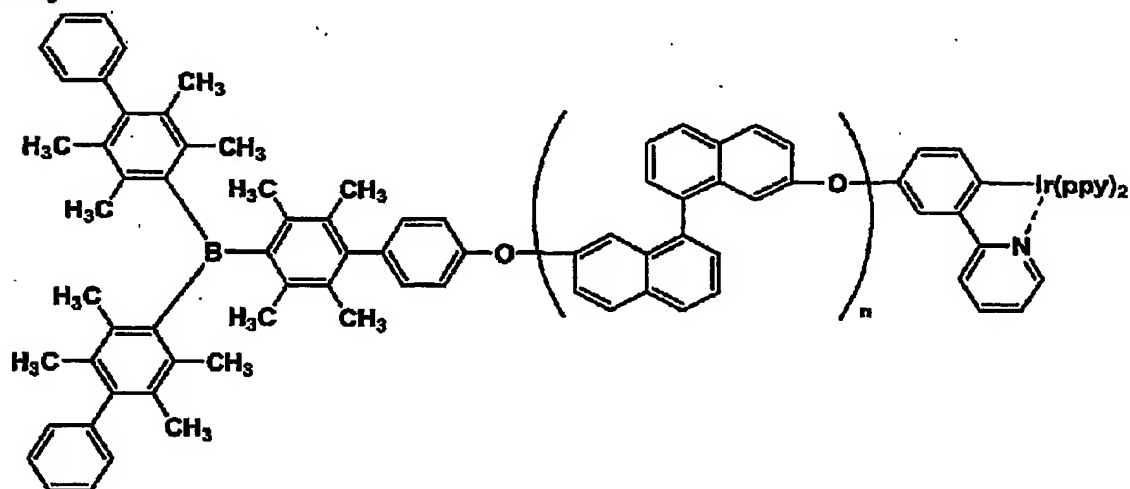


PO-7

以下、 ppy =  とする。

Poly-1**Poly-2****Poly-3****Poly-4**

Poly-5**Poly-6****Poly-7****Poly-8**

Poly-9**Poly-10****Poly-11**

前記一般式(1)で表される繰り返し単位を少なくとも一つ含む重合体は、陰極と陽極との間にある有機層のいずれの有機層に含有されていてもよいが、好ましくは、発光層に含有されるのが好ましい。これによ

り、一層高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに一層駆動電力を抑えることができる。

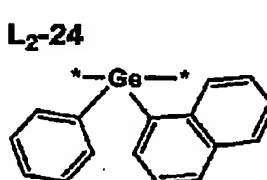
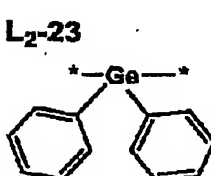
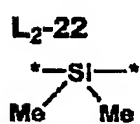
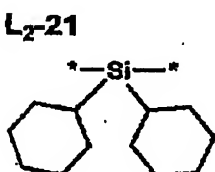
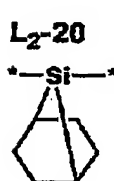
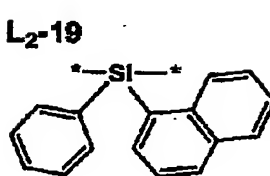
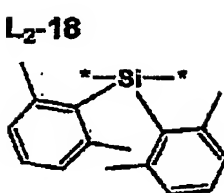
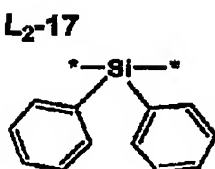
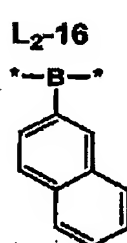
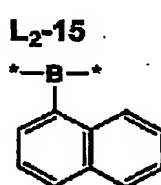
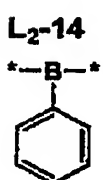
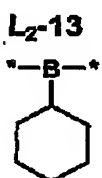
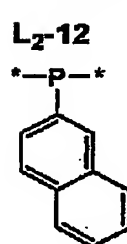
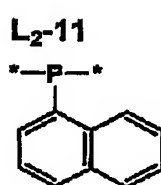
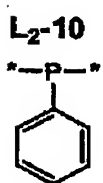
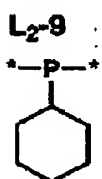
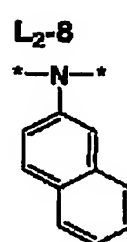
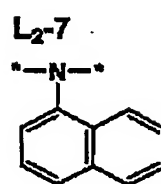
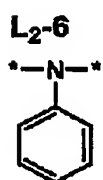
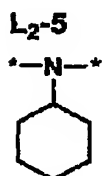
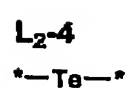
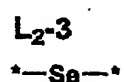
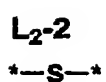
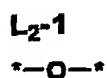
また、本発明者らは、陰極と陽極との間に有機層を少なくとも1層有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、この有機層の少なくとも1層に前記一般式(2)のいずれかで表される繰り返し単位を少なくとも一つ含む重合体を含有させることで、高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに駆動電力が抑えられた有機エレクトロルミネッセンス素子とすることができることを見出した。

前記一般式(2)において、 $A r_2$ は置換基を有していてもよいアリーレン基又はヘテロアリーレン基を表し、ヘテロアリーレン基のヘテロ原子の数は2以下である。 L_2 は前述した連結基群1から選ばれるいずれかの連結基を表し、 L_3 は、単なる結合手、又は前記連結基群2から選ばれるいずれかの連結基を表し、 X は、正孔輸送性基、電子輸送性基、蛍光性基、リン光性基のいずれかを表す。 n_2 は2以上の整数を表す。

前記連結基群2において、 $R_7 \sim R_{13}$ は、各々独立に、アルキル基又はアリール基を表し、 R_{10} と R_{11} 、 R_{12} と R_{13} は互いに連結して環を形成してもよい。

連結基群2の中でも、特にO原子、Se原子、S原子、Si原子で連結される連結基が本発明の効果を得る上で特に好ましく、最も好ましくはO原子、又はS原子で連結されたものである。

以下に前記連結基群2の例を示すが、本発明の態様がこれによって限定されるものではない。



前記一般式(2)のAr₂は環数が5以下であることが好ましく、これにより、一層高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに一層駆動電力を抑えることができる。

前記一般式(2)の Ar_2 の例としては前述した一般式(1)の Ar_1 の例が挙げられるが、本発明はこれに限定されるものではない。

正孔輸送性基とは、正孔を輸送する機能を有する部分構造を有する基であり、広い意味で正孔注入性基、電子阻止性基も正孔輸送性基に含まれる。特に制限はなく、従来、正孔の電荷注入輸送材料として慣用されているものやEL素子の正孔注入層、正孔輸送層に使用される公知の化合物の部分構造を有する基を用いることができる。

正孔輸送基は、正孔の注入もしくは輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えば、
10 トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、
ポリアリーラルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラズロン誘導体、
フェニレンジアミン誘導体、アリーラルアミン誘導体、アミノ置換カルボン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオ
レノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、
15 アニリン系共重合体等の部分構造を有する基が挙げられる。より好ましくは、トリアリーラルアミン誘導体、カルバゾール誘導体の部分構造を有する基が挙げられる。

トリアリーラルアミン誘導体を形成するアリーラル基として代表的であるのはフェニル基であるが、他にナフチル基、アントリル基、アズリル基、
20 フルオレニル基といった炭化水素芳香環残基や、フリル基、チエニル基、
ピリジル基、イミダゾリル基などのヘテロ芳香環残基や、該ヘテロ芳香環が別の芳香環と縮合して形成された縮合芳香環残基であってもよい。
トリアリーラルアミン部分を構成するアリーラル基として好ましくはフェニ

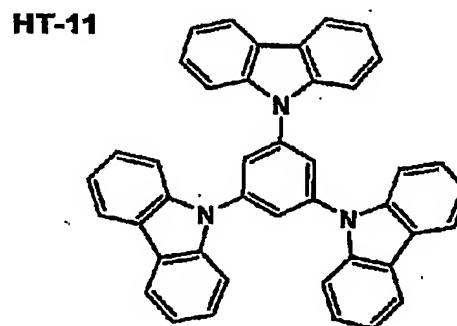
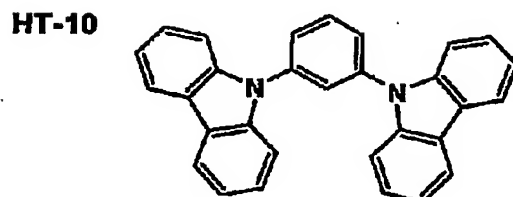
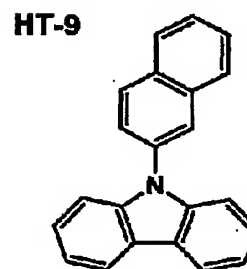
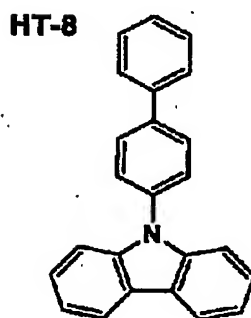
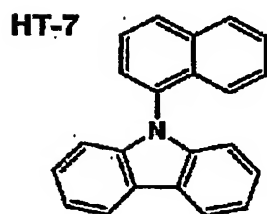
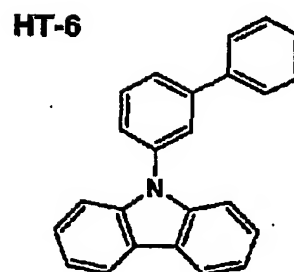
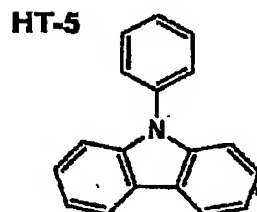
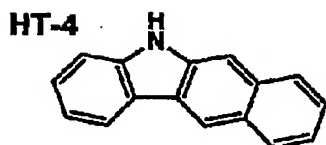
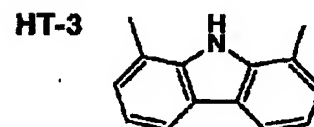
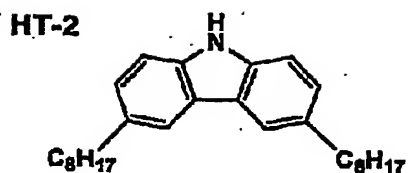
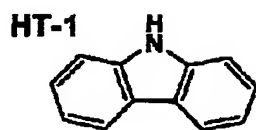
ル基、ナフチル基、フルオレニル基、チエニル基である。

本発明においては、正孔輸送性基として特にカルバゾール誘導体を含む基が好ましく、前記一般式(3)又は一般式(4)で表される部分構造を有する基であることが最も好ましい。これにより、一層高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに一層駆動電力を抑えることができる。

前記一般式(3)において、 $R_{14} \sim R_{21}$ は、各々独立に、水素原子、アルキル基、又はシクロアルキル基を表す。また、 $R_{14} \sim R_{21}$ の隣接する基同士で結合して環を形成していてもよい。

10 前記一般式(4)において、 $R_{22} \sim R_{30}$ は、各々独立に、水素原子、アルキル基、又はシクロアルキル基を表し、 $R_{31} \sim R_{34}$ は、各々独立に、水素原子、結合手、アルキル基、又はシクロアルキル基を表し、 $R_{31} \sim R_{34}$ のいずれか1つが結合手を表す。また、 $R_{22} \sim R_{34}$ の隣接する基同士で結合して環を形成していてもよい。

15 以下に正孔輸送性である部分構造の例を示す(これらの部分構造のいずれかの部分が結合手となる)。正孔輸送性基は、これらの部分構造を有する基であるが、本発明の態様がこれによって限定されるものではない。



電子輸送性基とは電子を輸送する機能を有する基であり、広い意味で電子注入性基、正孔阻止性基も電子輸送性基に含まれる。電子輸送性基は、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよ

く、従来、電子輸送層に用いられている化合物の部分構造を有する基を用いることができる。

この電子輸送性基の例としては、トリアリールボラン誘導体、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体などの部分構造を有する基が挙げられる。さらに、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジ
5 アゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体の部分構造を有する基も、電子輸送性基として用
10 いることができる。

また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えばトリス(8-キノリノール)アルミニウム(A1q)、トリス(5,7-ジクロロ-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5,7-ジブromo-8-キノリ
15 ノール)アルミニウム、トリス(2-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)亜鉛(Znq)など、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、Ga又はPbに置き替わった金属錯体の部分構造を有する基も、電子輸送性基として用いることが
20 できる。その他、メタルフリー若しくはメタルフタロシアニン、又はそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基などで置換されている部分構造を有する基も、電子輸送性基として好ましく用いることができる。

好ましくは、トリアリールボラン誘導体や窒素原子を含む複素芳香環

の部分構造を有する基が挙げられる。窒素原子を含む芳香環は2つ以上のヘテロ原子を含むものがより好ましく、その例としてはピラジン環、ピリミジン環、フェナントロリン環、ピリドインドール環、ジピリドピロール環、ジアザフルオレン環、フェナチアジン環、チアゾール環もしくはこれらの芳香環がさらに芳香環と縮合して形成された縮合芳香環化合物残基が挙げられるほか、さらには電子吸引性置換基によって置換された炭化水素環残基（例えばペンタフルオロフェニル基、2, 4, 6-トリシアノフェニル基など）を挙げることができる。特に好ましくは、ペンタフルオロフェニル基、トリアリールボラン類残基、フェナントロリン環、ピリドインドール環、チアゾール環およびこれらの部分構造を有する縮合芳香環化合物残基を挙げることができる。これにより、より一層発光効率を向上させることができる。

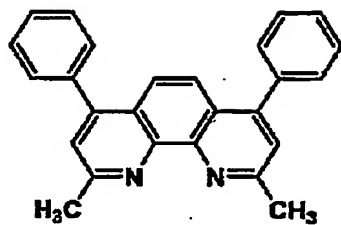
トリアリールボラン誘導体を形成するアリール基として代表的であるのはフェニル基であるが、他にナフチル基、アントリル基、アズリル基、フルオレニル基といった炭化水素芳香環残基や、フリル基、チエニル基、ピリジル基、イミダゾリル基などのヘテロ芳香環残基や、該ヘテロ芳香環が別の芳香環と縮合して形成された縮合芳香環残基であってもよい。

トリアリールボラン誘導体はその電子欠乏性のためにしばしば不安定であり、安定化のためにアリール基のホウ素原子と結合した原子に隣接する原子に置換基を導入することが多い。たとえばホウ素原子と結合したベンゼン環にメチル基を導入したトリメシチルボランや、イソプロピル基を導入したトリス（ジイソプロピル）ボランである。配位子にトリアリールボラン構造を含む場合、ホウ素原子と結合したアリール基には、

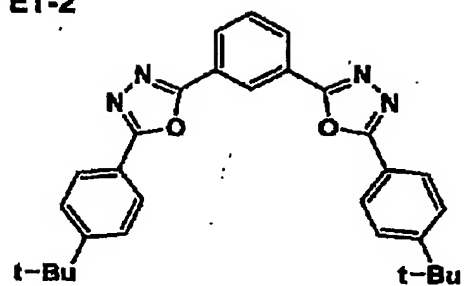
そのホウ素原子と直接結合した原子の隣接位に置換基を導入することが好ましい。好ましい置換基としてはメチル基、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、イソプロピル基等を挙げることができる。

以下に電子輸送性である部分構造の例を示す（これらの部分構造のいずれかの部分が結合手となる）。電子輸送性基は、これらの部分構造を有する基であるが、本発明の態様がこれによって限定されるものではない。

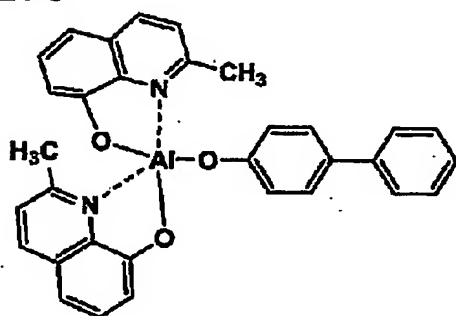
ET-1



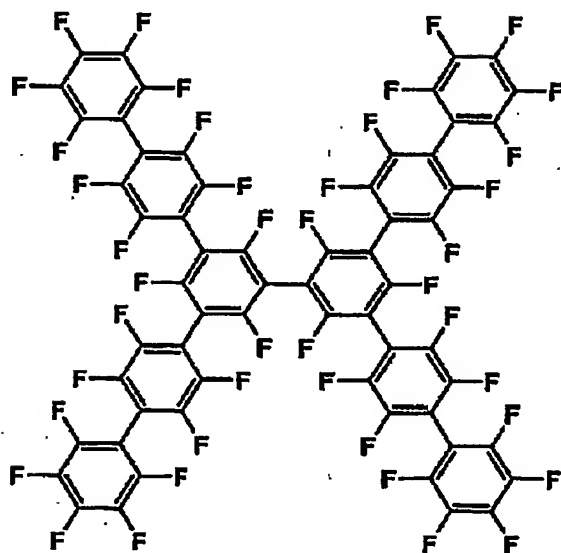
ET-2



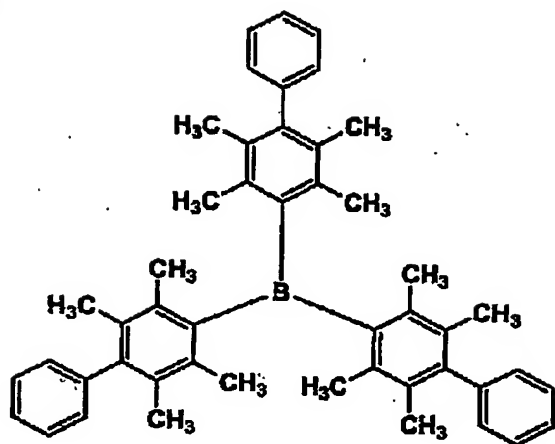
ET-3



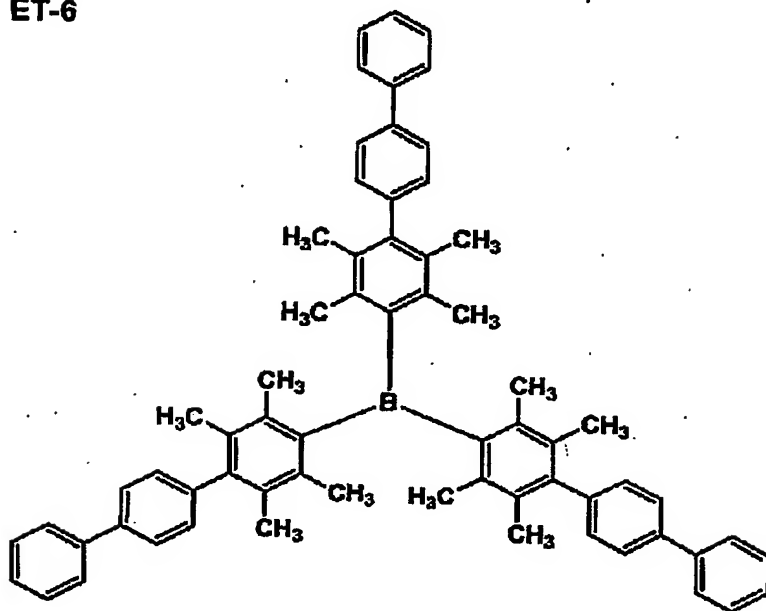
ET-4



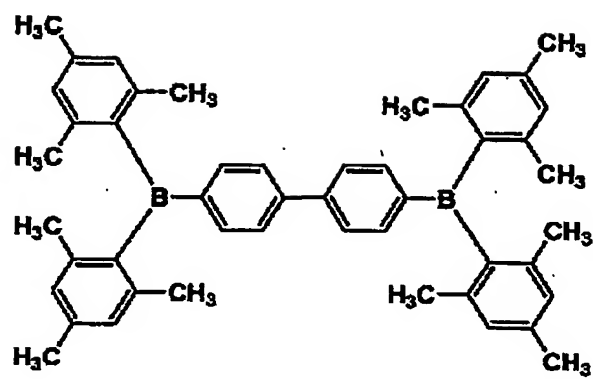
ET-5



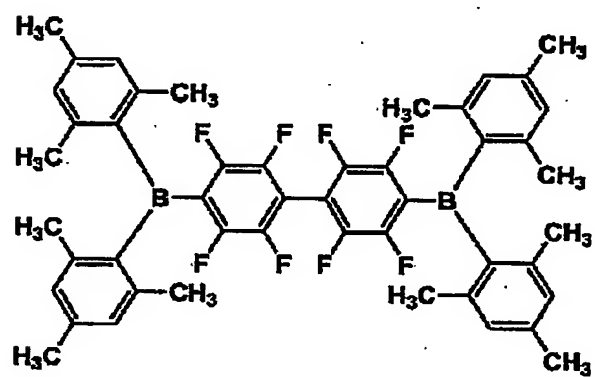
ET-6



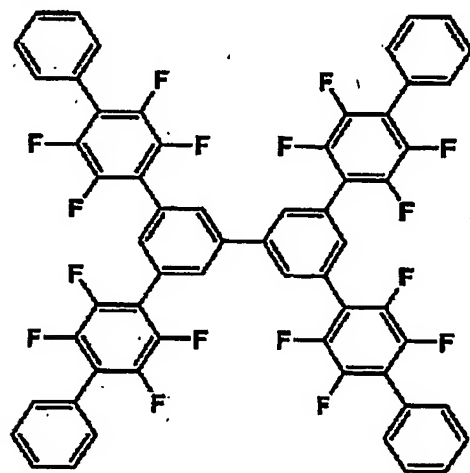
ET-7



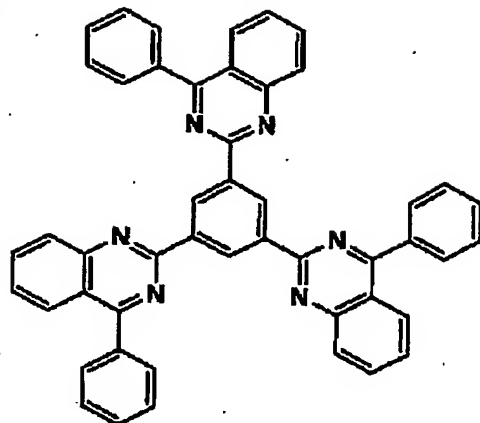
ET-8



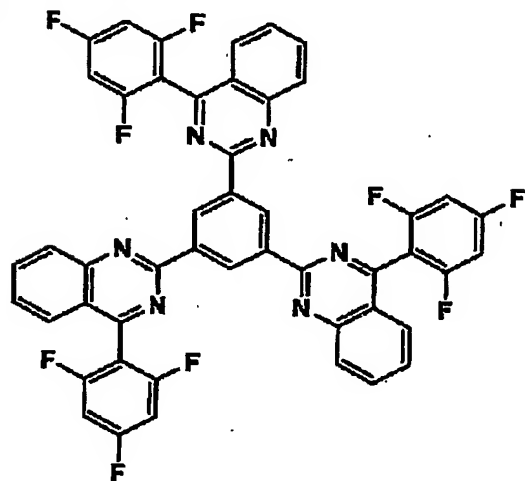
ET-9



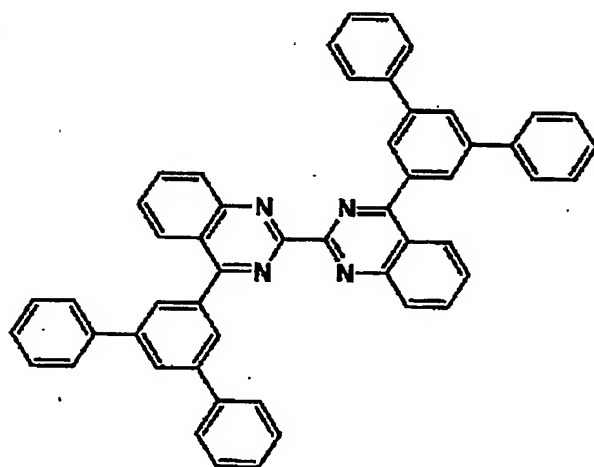
ET-10



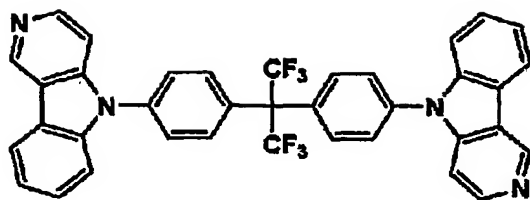
ET-11



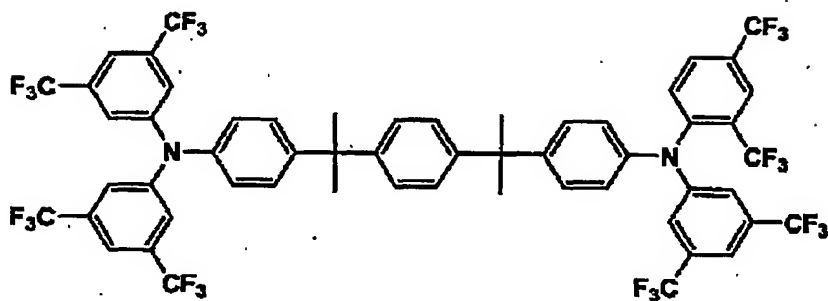
ET-12



ET-13



ET-14



蛍光性基とは、溶液状態で蛍光量子収率が高い蛍光性有機分子、または、希土類錯体系蛍光体の部分構造を有する基である。ここで、蛍光量子収率は10%以上、特に30%以上が好ましい。蛍光量子収率が高い

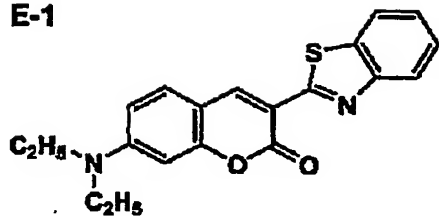
5 蛍光性有機分子としては、例えばクマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素などが挙げられ、これらの部分構造を有する基を蛍光性基として用

10 いることができる。

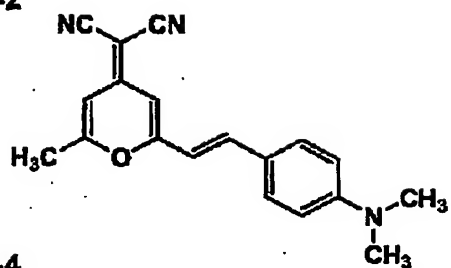
以下に蛍光性である部分構造の例を示す（これらの部分構造のいずれかの部分が結合手となる）。蛍光性基は、これらの部分構造を有する基であるが、本発明の態様がこれによって限定されるものではない。

39

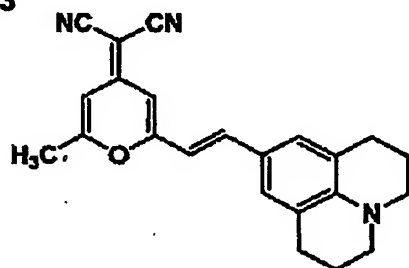
E-1



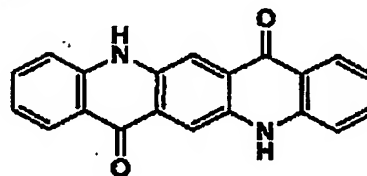
E-2



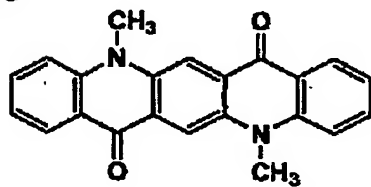
E-3



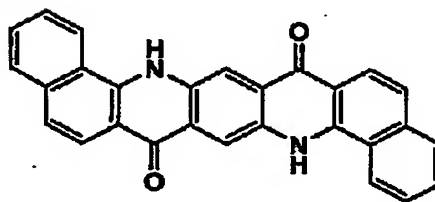
E-4



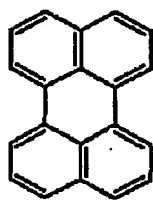
E-5



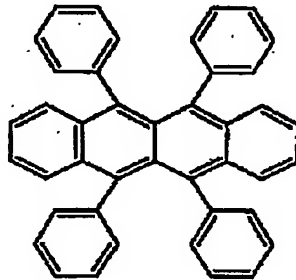
E-6



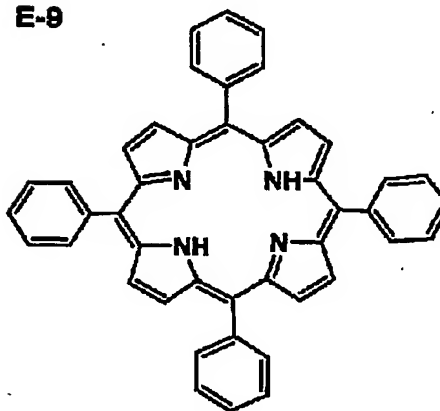
E-7



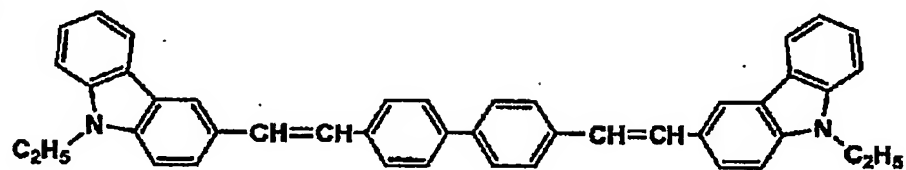
E-8



E-9

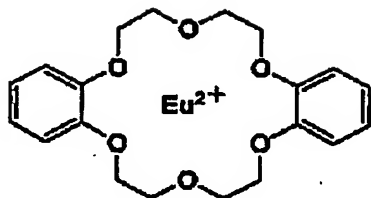


E-10

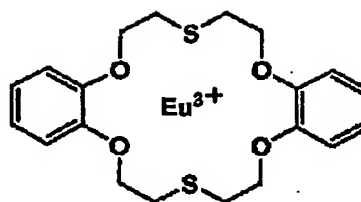


40

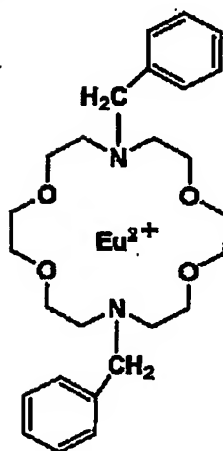
E-11



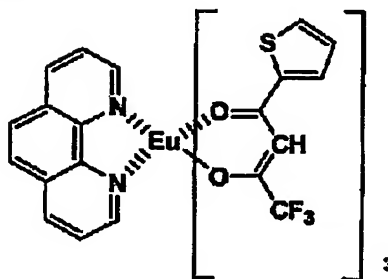
E-12



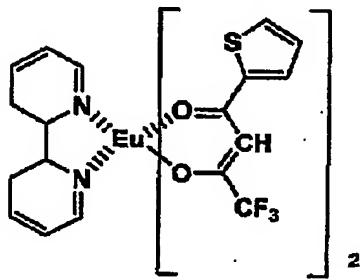
E-13



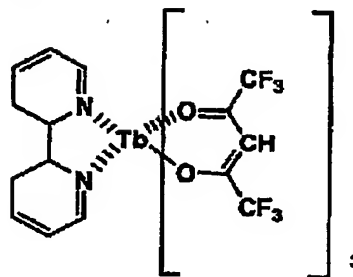
E-14



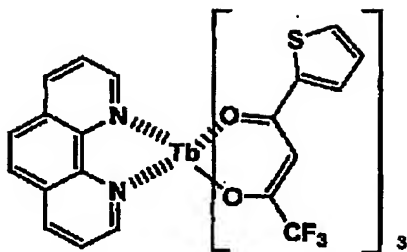
E-15



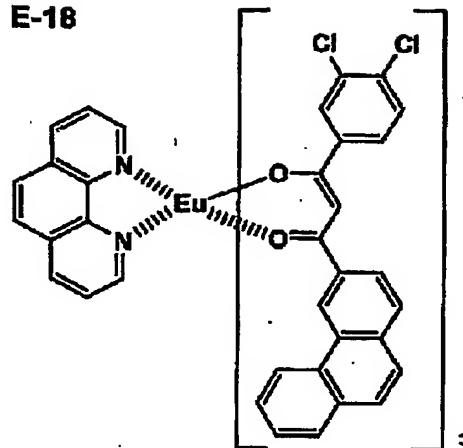
E-16



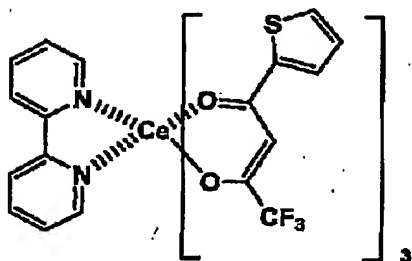
E-17



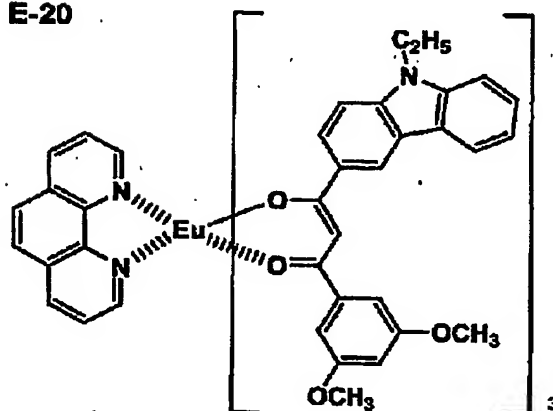
E-18



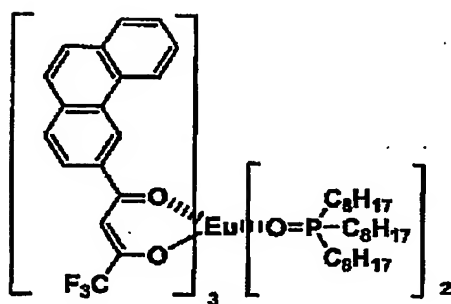
E-19



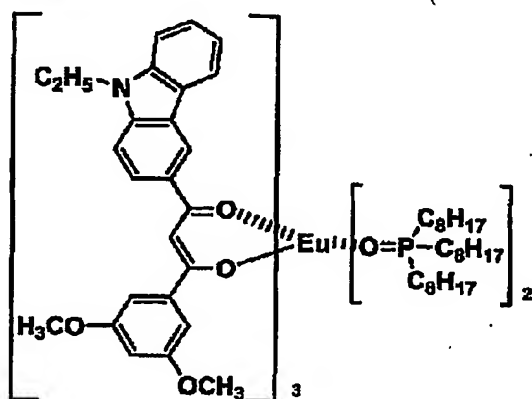
E-20



E-21



E-22



リン光性基とは励起三重項からの発光が観測される部分構造を有する

基であり、化合物のリン光量子収率が、25℃において0.001以上である。リン光量子収率は好ましくは0.01以上、更に好ましくは0.1以上である。

上記リン光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光IIの398頁(1992年版、丸善)に記載の方法により測定できる。溶液中でのリン光量子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、任意の溶媒の何れかにおいて上記リン光量子収率が達成されれば良い。

リン光性基は、有機金属錯体を含む基であることが好ましく、これにより、一層高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに一層駆動電力が抑えることができる。

有機金属錯体は、前記一般式(5)～(8)のいずれかで表される部分構造を有することが好ましく、これにより、さらに一層高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに一層駆動電力を抑えることができる。

一般式(5)において、 $R_{35} \sim R_{42}$ は、各々独立に、水素原子、結合手、又は置換基を表し、 $R_{35} \sim R_{42}$ の隣接する基同士で結合して環を形成していてもよい。Mは、金属原子を表す。

一般式(6)において、 Z_1 、 Z_2 は、各々独立に、炭素原子、窒素原子とともに芳香環を形成するのに必要な原子群を表す。Mは、金属原子を表す。

一般式(7)において、 $R_{43} \sim R_{48}$ は、各々独立に、水素原子、結合手、又は置換基を表し、 $R_{43} \sim R_{48}$ の隣接する基同士で結合して環を形成していてもよい。Mは、金属原子を表す。

一般式(8)において、Yは2価の連結基を表し、 $R_{49} \sim R_{56}$ は、各々

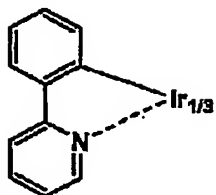
独立に、水素原子、結合手、又は置換基を表し、 $R_{4.9} \sim R_{5.6}$ の隣接する基同士で結合して環を形成していてもよい。Mは、金属原子を表す。

一般式(5)～(8)のMには、イリジウム原子、パラジウム原子、白金原子、ロジウム原子、ルテニウム原子、オスミウム原子であることが好ましい。これにより、一層高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに一層駆動電力を抑えることができる。

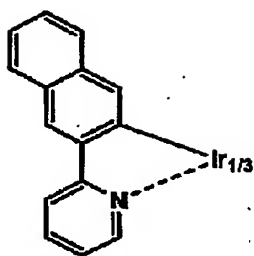
本発明に係る有機金属錯体は、好ましくは元素の周期律表で8族の金属を含有する有機金属錯体であり、更に好ましくは、イリジウム化合物、オスミウム化合物、または白金化合物（白金錯体系化合物）、ロジウム化合物、パラジウム化合物、ルテニウム化合物、希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。これにより、一層高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに一層駆動電力を抑えることができる。

以下にリン光性である部分構造の例を示す（これらの部分構造のいずれかの部分が結合手となる）。リン光性基は、これらの部分構造を有する基であるが、本発明の態様がこれによって限定されるものではない。

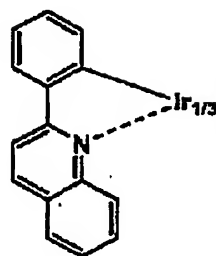
P-1



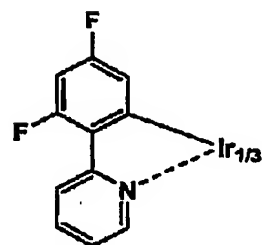
P-2



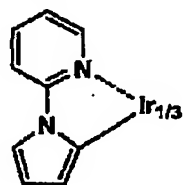
P-3



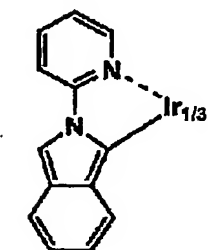
P-4



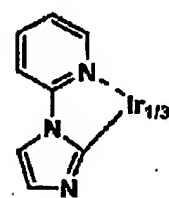
P-5



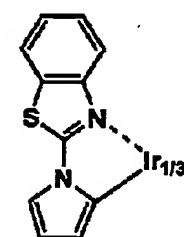
P-6



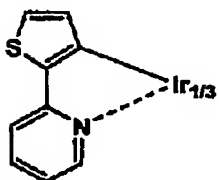
P-7



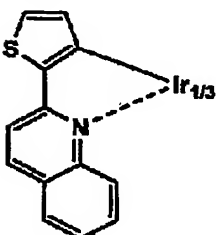
P-8



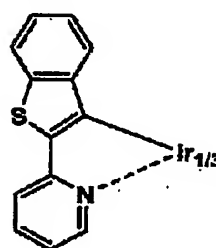
P-9



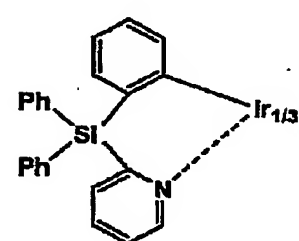
P-10



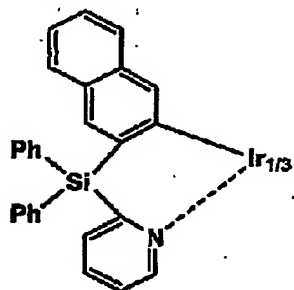
P-11



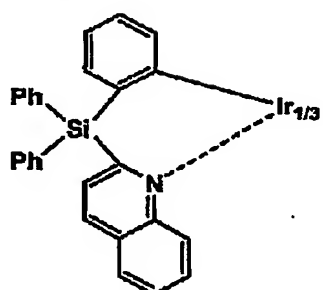
P-12



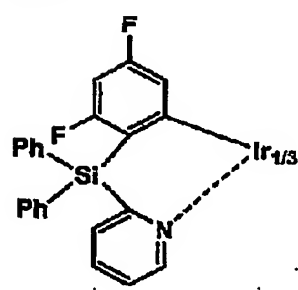
P-13



P-14



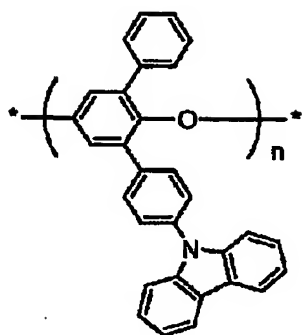
P-15



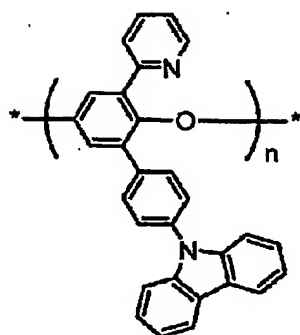
また前記一般式(2)で表される繰り返し単位を有する少なくとも一つ含む重合体の両末端の構造については特に制限するものではないが、水素原子、アルキル基、置換基を有しても良いアリール基などでキャッ

プすることが好ましく、有機EL素子としての機能上の観点から正孔阻止性基、蛍光性基又はりん光性基によってキャップすることがより好ましい。

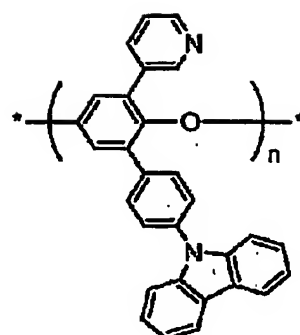
- 前記一般式(2)で表される繰り返し単位を少なくとも一つ含む重合
- 5 体の例としては、上述した例を組み合わせた重合体が挙げられるが、以下に前記一般式(2)で表される繰り返し単位を少なくとも一つ含む重合体の特に好ましい例を示す。しかしながら、本発明の態様がこれによって限定されるものではない。



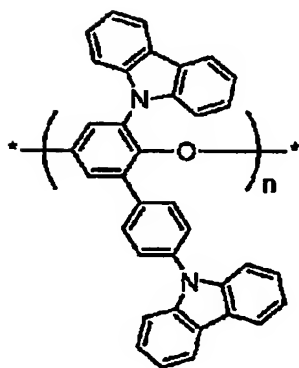
PO-8



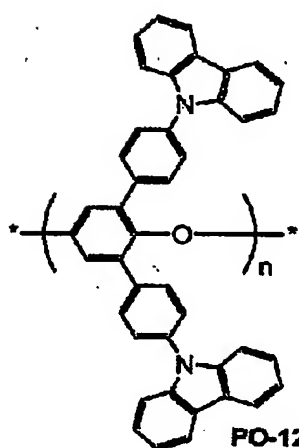
PO-9



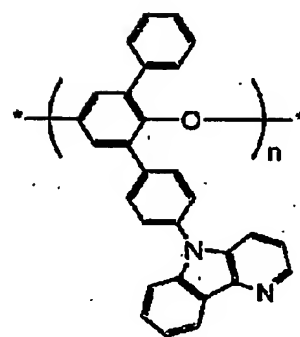
PO-10



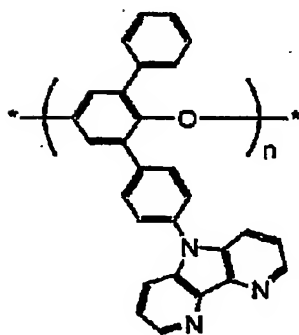
PO-11



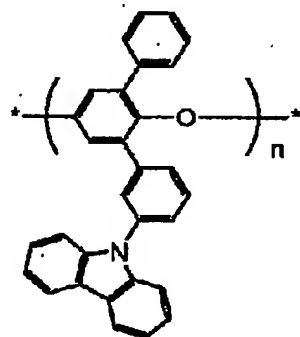
PO-12



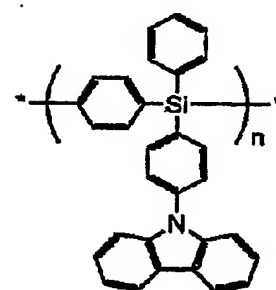
PO-13



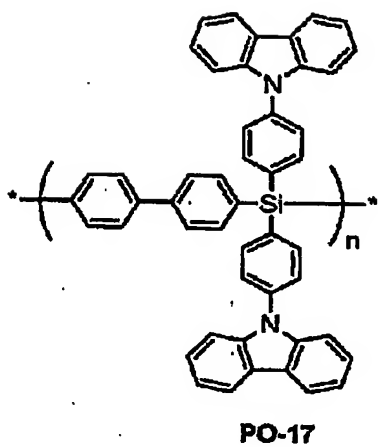
PO-14

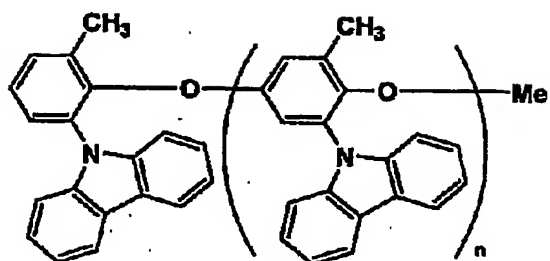
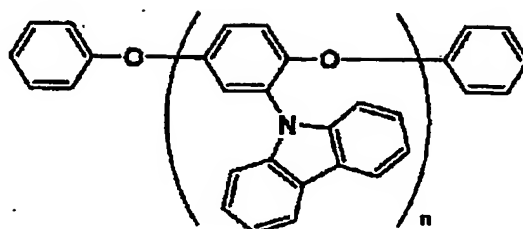
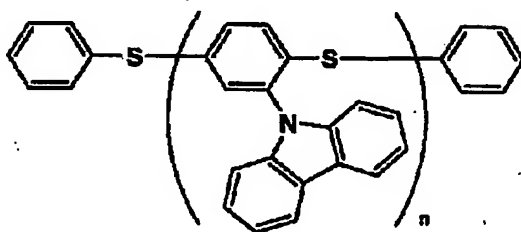


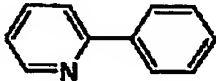
PO-15

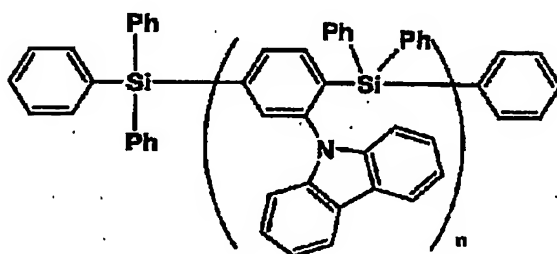
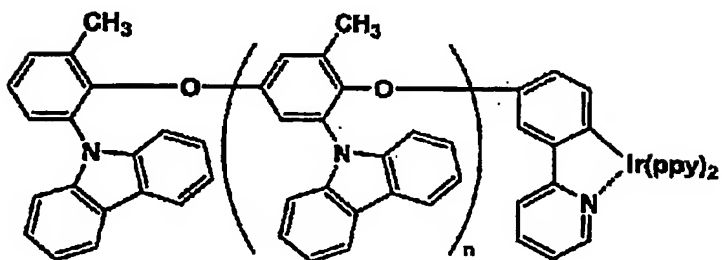


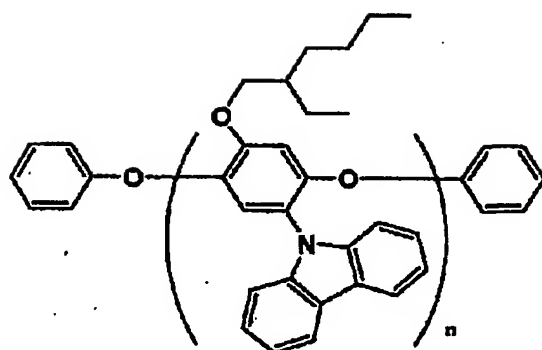
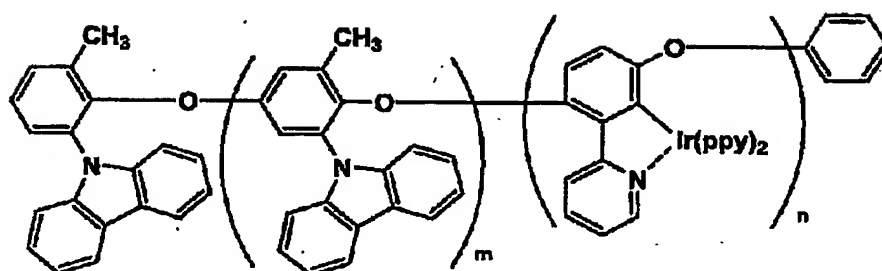
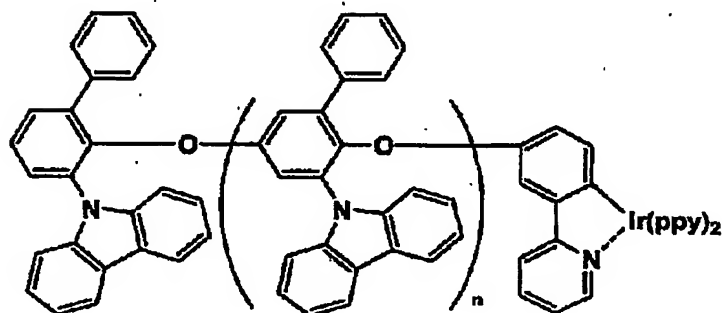
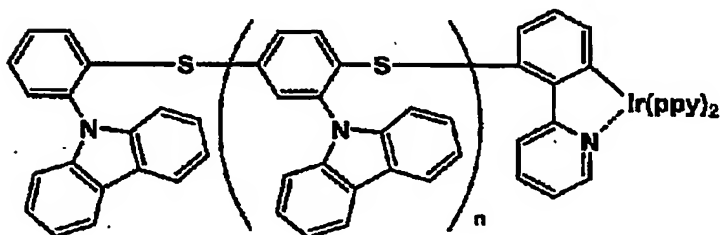
PO-16

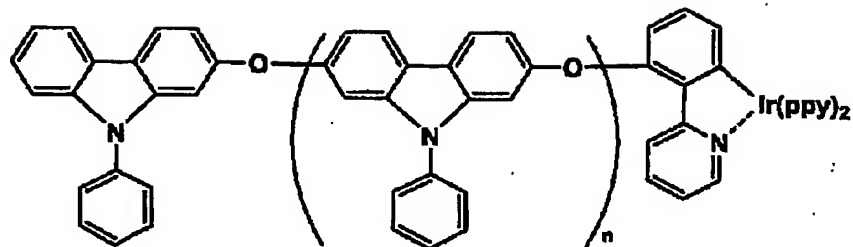
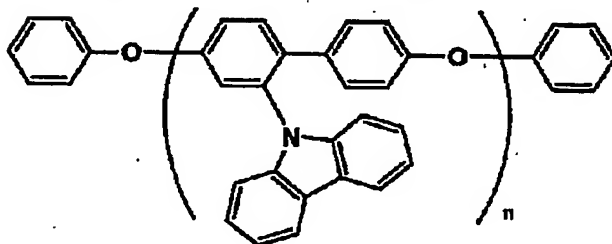
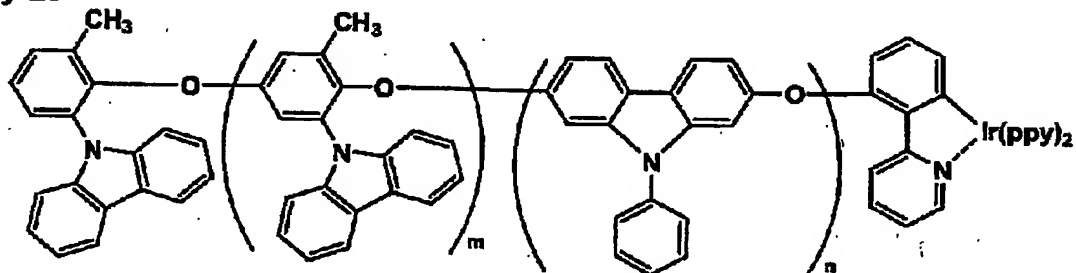
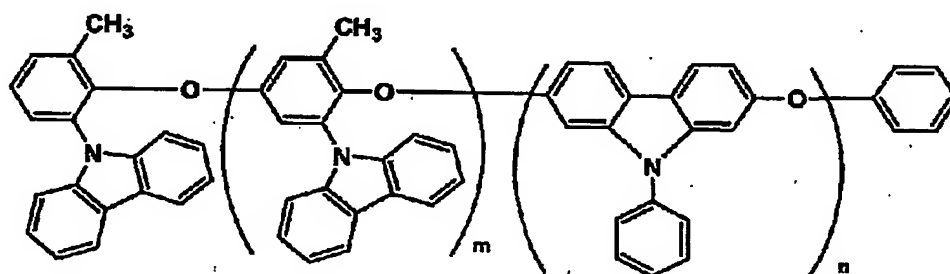
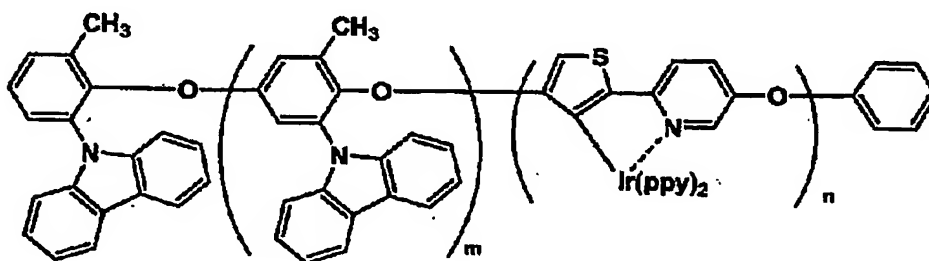


Poly-12**Poly-13****Poly-14**

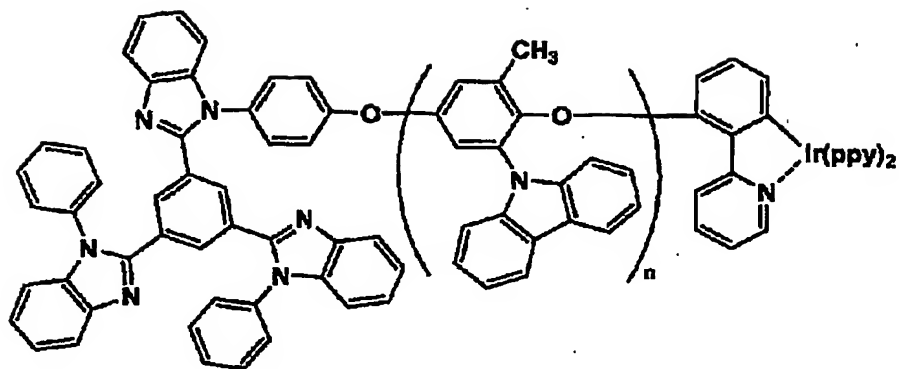
以下、 ppy =  とする。

Poly-15**Poly-16**

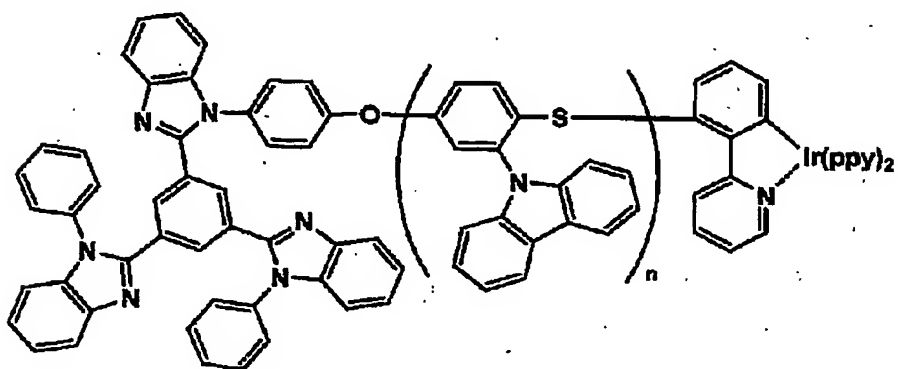
Poly-17**Poly-18****Poly-19****Poly-20**

Poly-21**Poly-22****Poly-23****Poly-24****Poly-25**

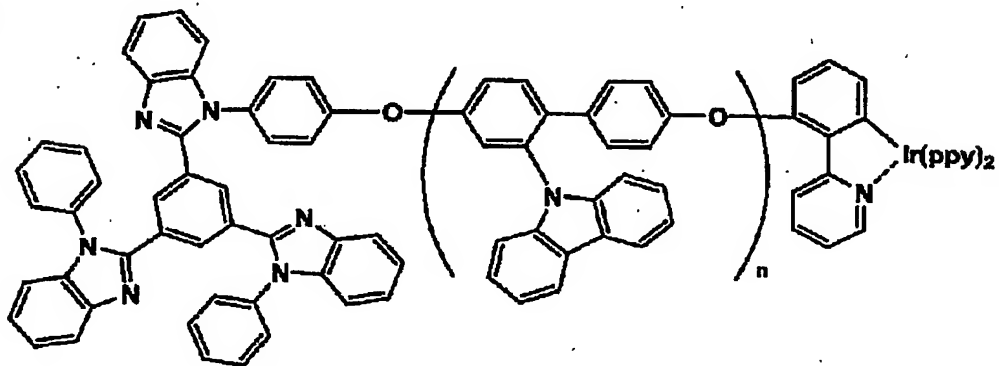
Poly-26

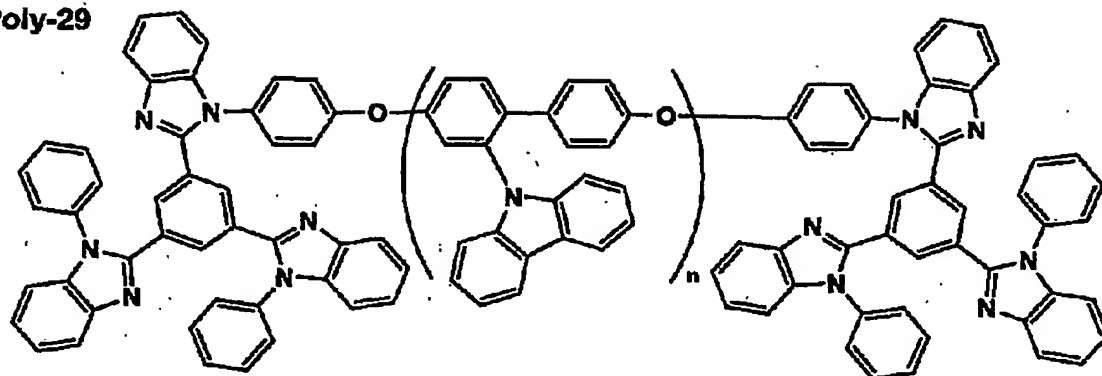
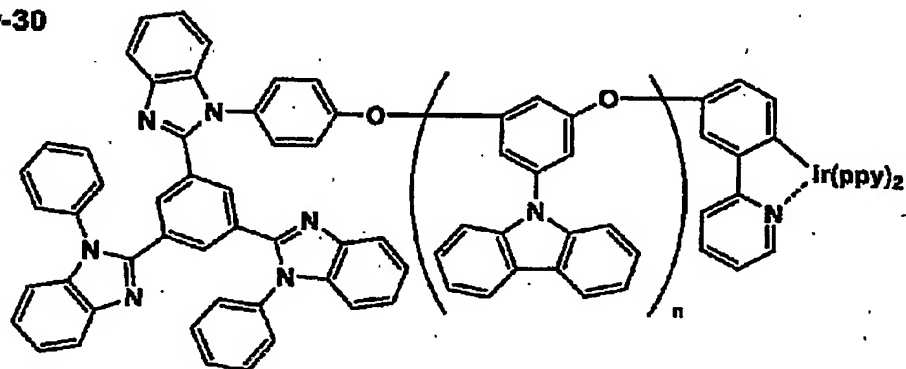
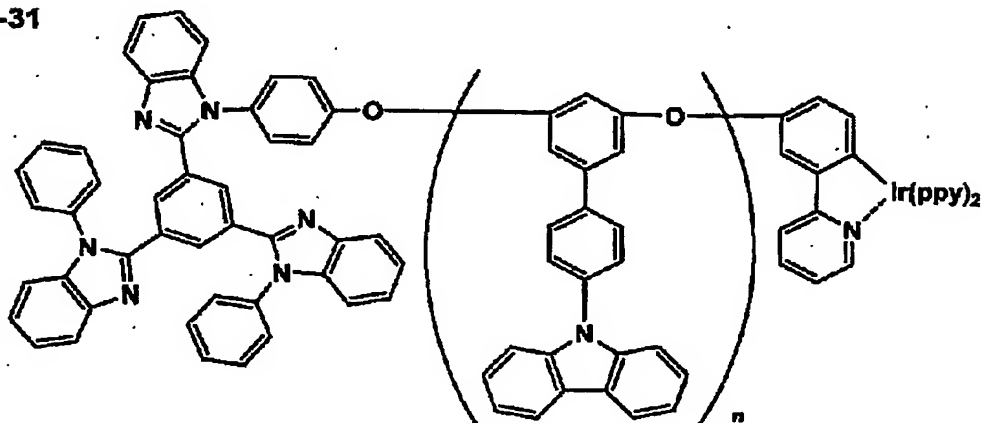


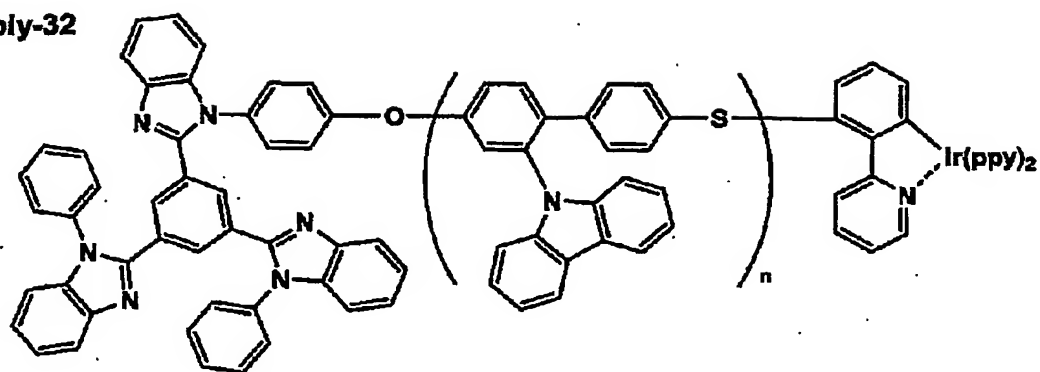
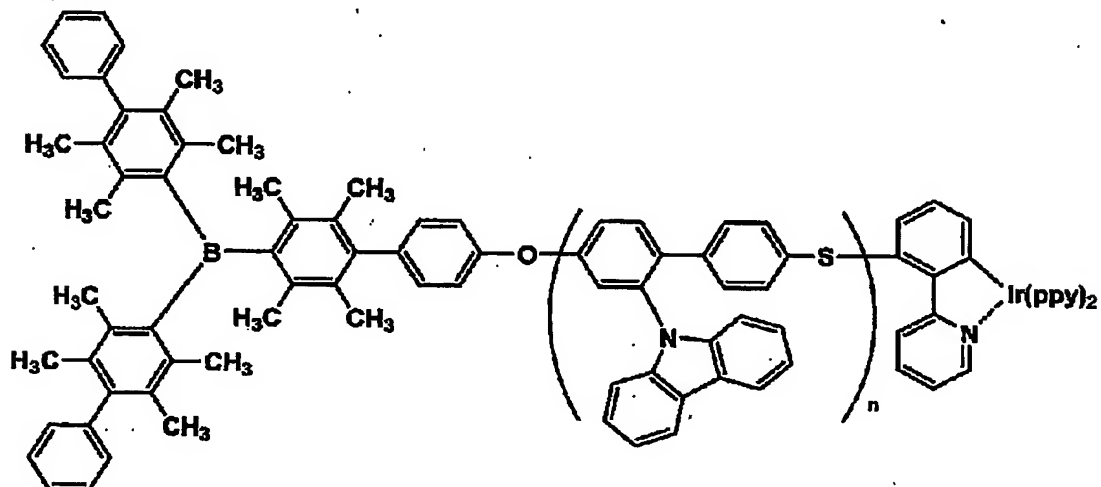
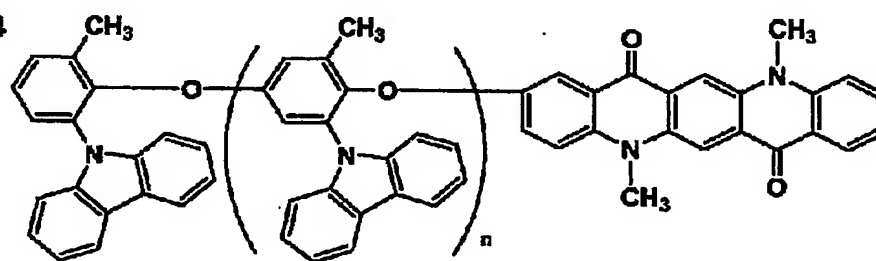
Poly-27

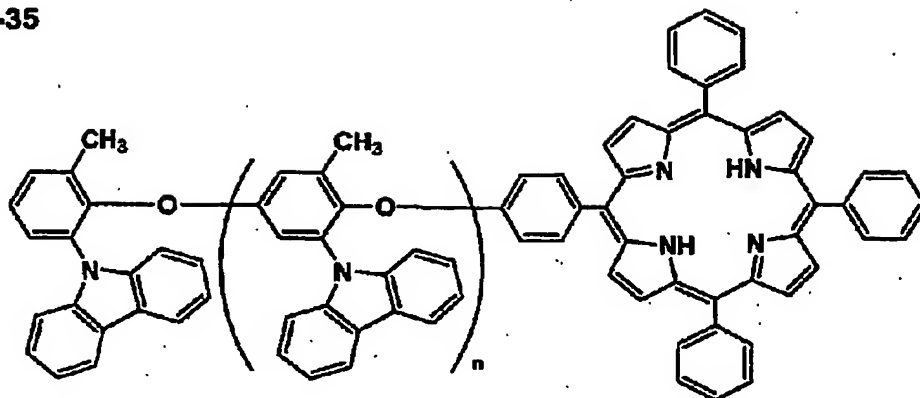
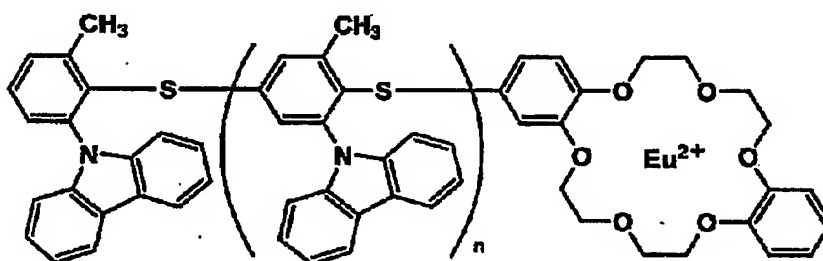
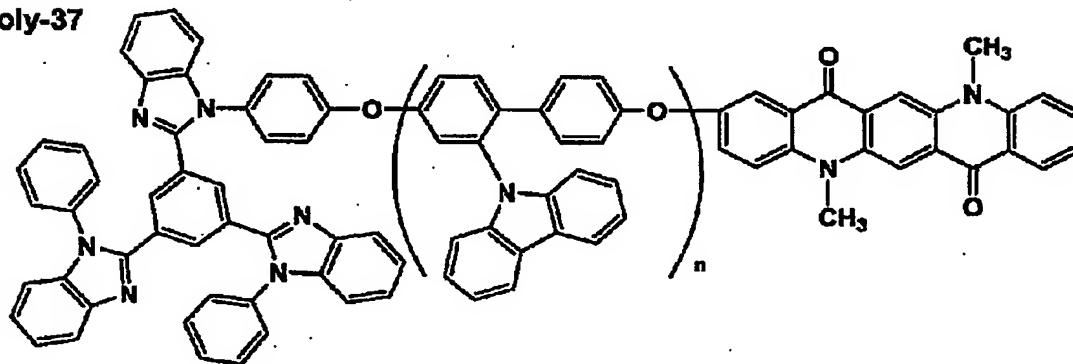


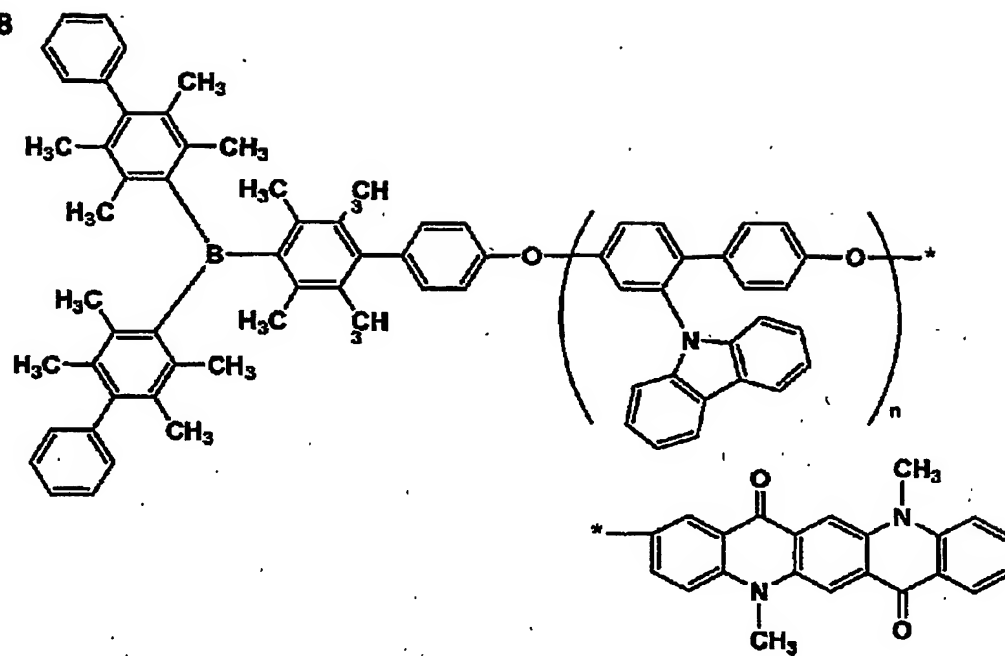
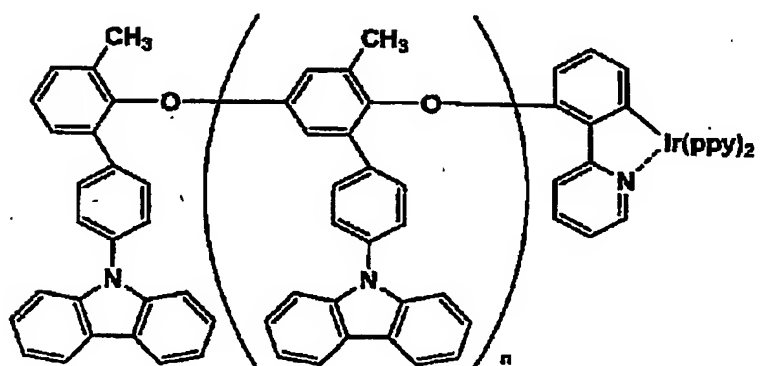
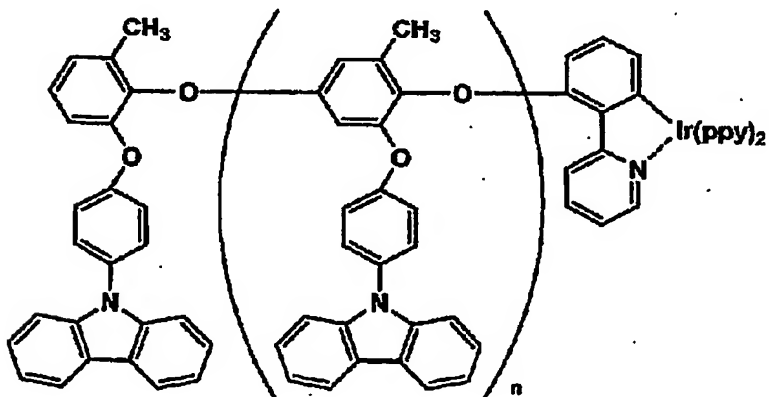
Poly-28

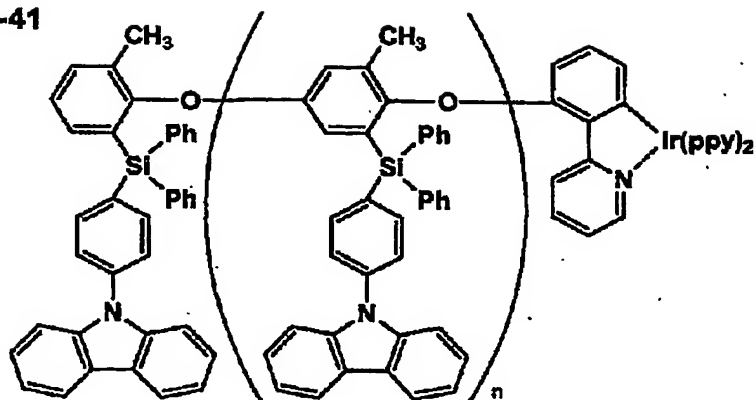
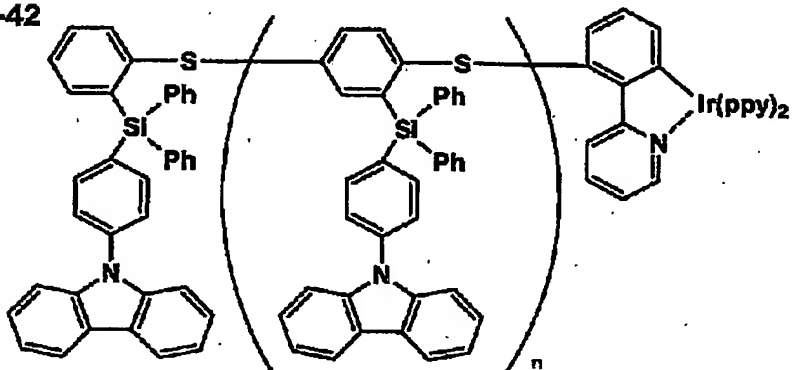
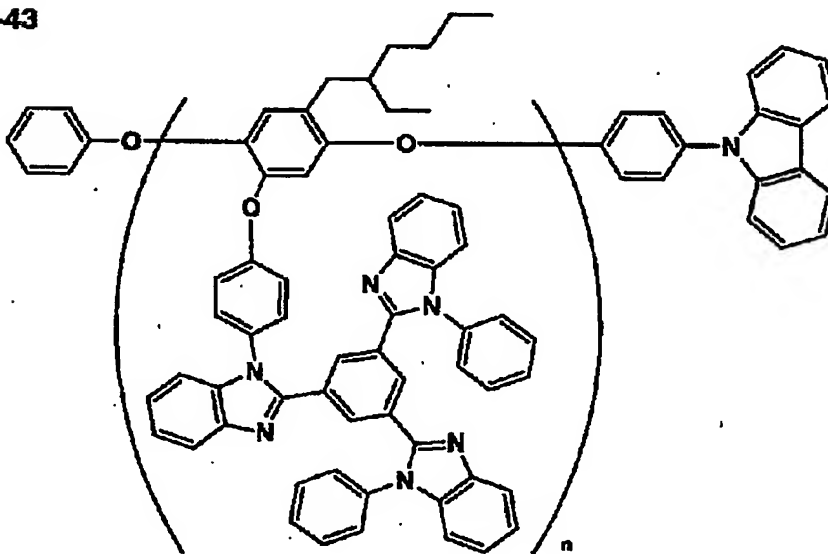


Poly-29**Poly-30****Poly-31**

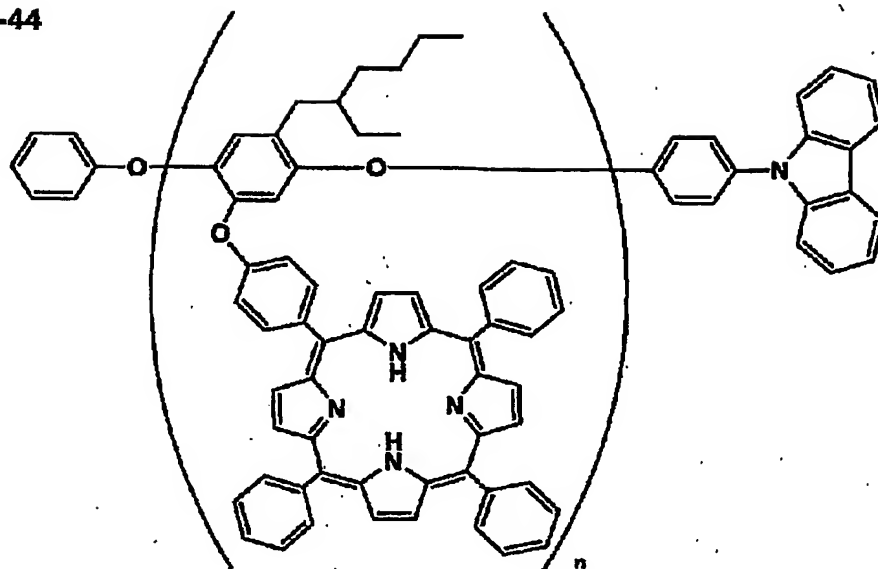
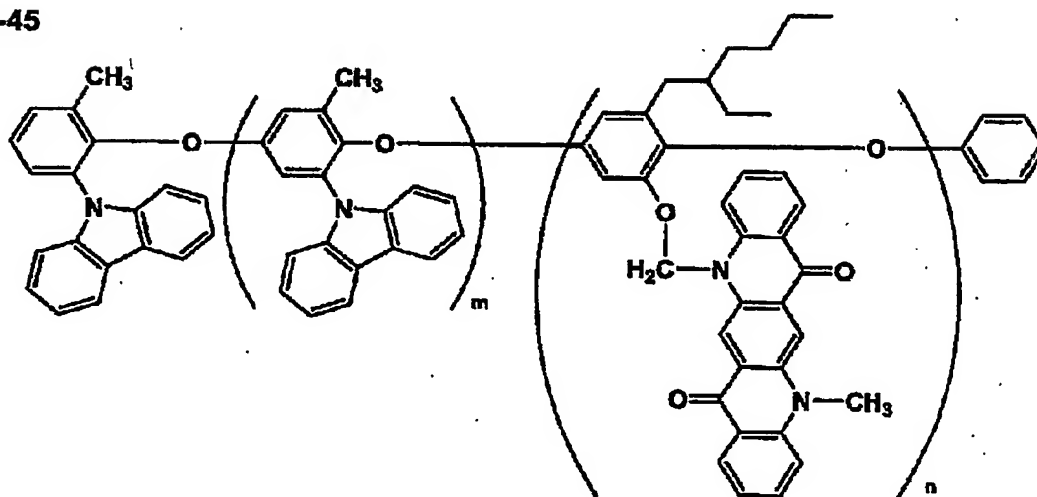
Poly-32**Poly-33****Poly-34**

Poly-35**Poly-36****Poly-37**

Poly-38**Poly-39****Poly-40**

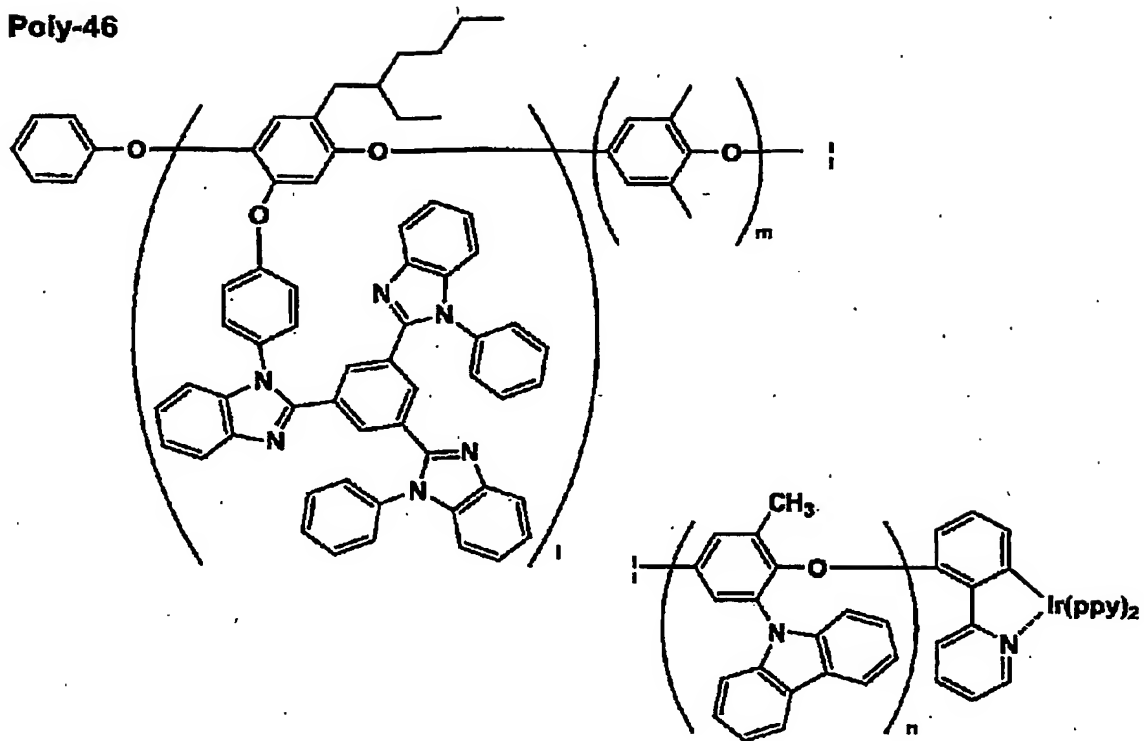
Poly-41**Poly-42****Poly-43**

57

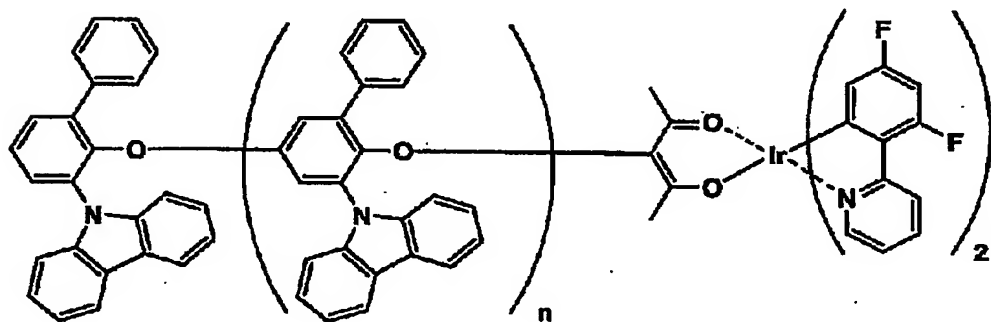
Poly-44**Poly-45**

58

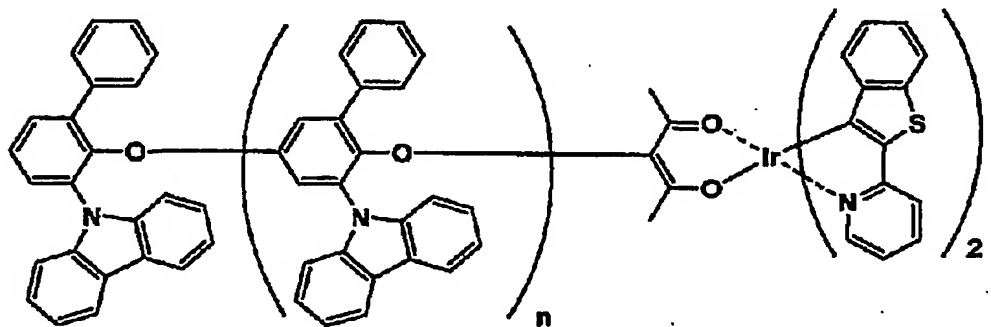
Poly-46



Poly-47



Poly-48



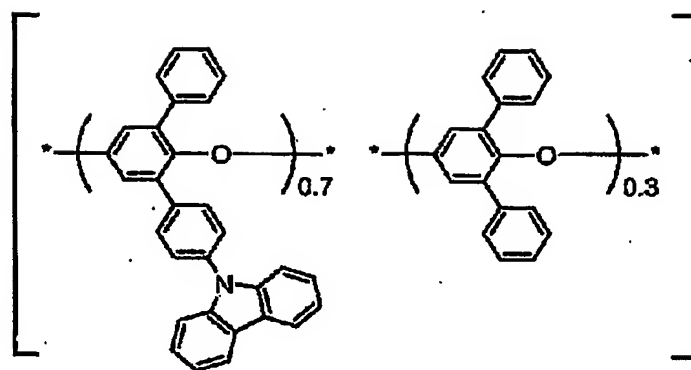
一般式(2)で表される繰り返し単位を少なくとも一つ含む重合体は、陰極と陽極との間にある有機層のいずれの有機層に含有されていてもよいが、Xが正孔輸送性基である場合には、後述する正孔輸送層、電子阻止層、又は発光層に含有されていることが本発明の効果を得る上で好ましい。

また、Xが電子輸送性基である場合には、後述する電子輸送層、正孔阻止層、又は発光層に含有されていることが本発明の効果を得る上で好ましい。

また、Xが蛍光性基、又はリン光性基である場合には、発光層に含有されていることが本発明の効果を得る上で好ましい。

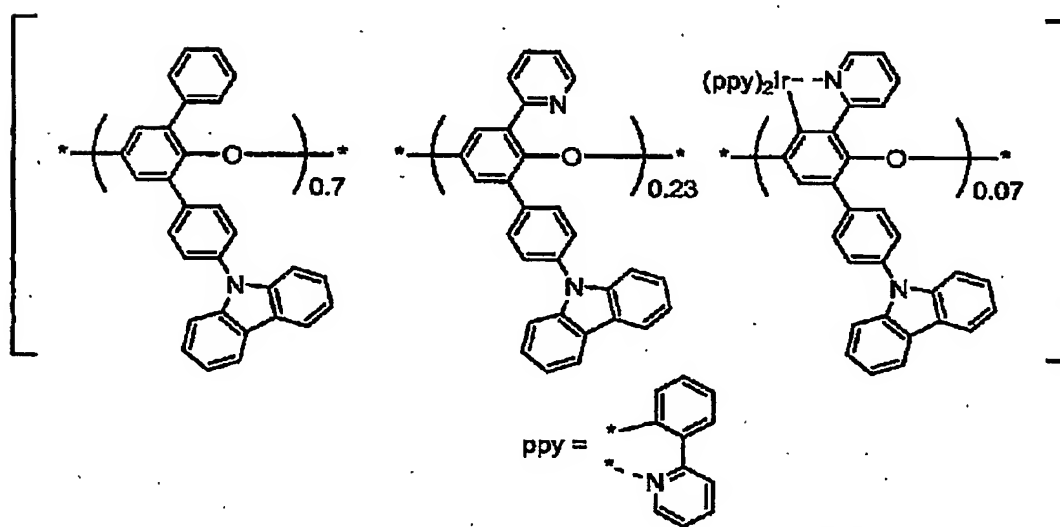
一般式(22)で表される共重合体の特に好ましい例を以下に示す。しかしながら本発明の態様がこれによって限定されるものではない。

60



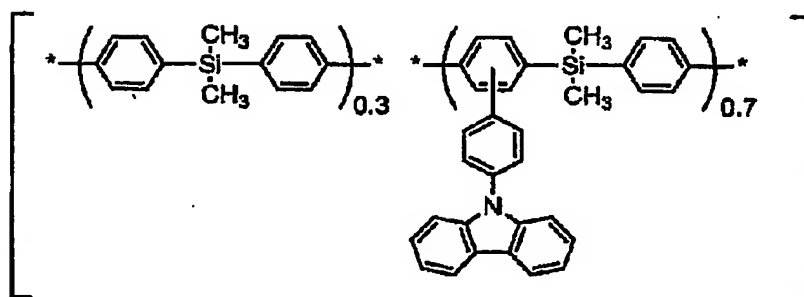
PO-18

小括弧横の数字はモル比を表す



PO-19

小括弧横の数字はモル比を表す



PO-20

小括弧横の数字はモル比を表す

本明細書において置換基はアルキル基（例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基等）、シクロアルキル基（例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等）、アルケニル基（例えば、ビニル基、アリル基等）、アルキニル基（例えば、エチニル基、プロパルギル基等）、ヘテロ原子を有するものを含むアリアル基（例えば、フェニル基、ナフチル基、ピリジル基、チエニル基、フリル基、イミダゾリル基等）、ヘテロ環基（例えば、ピロリジル基、イミダゾリジル基、モルホルル基、オキサゾリジル基等）、アルコキシ基（例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、オクチルオキシ基、ドデシルオキシ基等）、シクロアルコキシ基（例えば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等）、ヘテロ原子を有するものを含むアリアルオキシ基（例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基、ピリジルオキシ基、チエニルオキシ基等）、アルキルチオ基（例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、ドデシルチオ基等）、シクロアルキルチオ基（例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等）、ヘテロ原子を有するものを含むアリアルチオ基（例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基、ピリジルチオ基、チエニルチオ基等）、アルコキシカルボニル基（例えば、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等）、ヘテロ原子を有するものを含むアリアル

オキシカルボニル基（例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチル
 オキシカルボニル基、ピリジルオキシカルボニル基、チエニルオキシカ
 ルボニル基等）、アミノ基（例えば、アミノ基、エチルアミノ基、ジメ
 チルアミノ基、プチルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、2-エチル
 5 ヘキシルアミノ基、ドデシルアミノ基、アニリノ基、ナフチルアミノ基、
 2-ピリジルアミノ基等）、フッ素原子、塩素原子、フッ化炭化水素基
 （例えば、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロ
 エチル基、ペンタフルオロフェニル基等）、シアノ基が挙げられる。こ
 れらの置換基は複数が互いに結合して環を形成していても、上記置換基
 10 によってさらに置換されていてもよい。

本発明に係る重合体の分子量は、1000～100000であることが
 が好ましく、より好ましくは、2000～50000である。この範囲
 とすることで、塗布法で有機EL素子の有機層を形成する場合に、溶媒
 への溶解性が確保され、溶液の粘度が有機層形成に適するようになり、
 15 有機層を容易に形成することができる。

本発明に係る重合体について、重合体を形成するためのモノマーは既
 知の方法によって、当業者であれば容易に得ることができる。また、本
 発明に係る重合体とするためのモノマーの重合方法についても当業者で
 あれば既知の方法を応用することによって可能である。

20 以下に本発明に係る重合体の代表的な例について合成法を示すが、本
 発明の態様がこれによって限定されるものではない。

(1) PO-8の合成

4-N-カルバゾリル-2'-ヒドロキシ-m-terフェニル410

mg (1.0 mmol) を 10 ml のトルエンに溶解し、1 分ほどそのまま激しく攪拌させた溶液の中に、酸化銀 800 mg (3.4 mmol) を加えた。室温で 12 h 反応を行った後、濾過にて生成する銀と酸化銀を取り除き、メタノールからの再沈殿により収率 81% (330 mg) で目的の PO-8 を得た。また、GPC による数平均分子量は 38000 (ポリスチレン換算) であった。

(2) PO-19 の合成

4-N-カルバゾリル-2'-ヒドロキシ-merf フェニル 290 mg (0.7 mmol)、2-(2-ピリジル)-6-(4'-カルバゾリル) フェニルフェノール 124 mg (0.3 mmol)

を 10 ml のトルエンに溶解し、1 分ほどそのまま激しく攪拌させた溶液の中に、酸化銀 800 mg (3.4 mmol) を加えた。室温で 12 h 反応を行った後、濾過にて生成する銀と酸化銀を取り除き、メタノールからの再沈殿により収率 85% (350 mg) で目的のポリマー前駆体を得た。

ビス(μ -クロロ)テトラキス(2-フェニルピリジン)ジイリジウム(III) {[Ir(ppy)₂Cl]₂} 21 mg (0.02 mmol) を 4 ml の塩化メチレンに溶解し、2 ml のメタノールに溶解したトリフルオロ酢酸銀 88 mg (0.04 mmol) を加え、室温で 10 分攪拌した。次いで、前述のポリマー前駆体 230 mg の塩化メチレン溶液 (2 ml) を加え、30 分間攪拌を行った。反応終了後、不溶物を濾別し、メタノールからの再沈殿により収率 87% (200 mg) で目的の PO-19 を得た。また、GPC による数平均分子量は 32000 (ポ

リスチレン換算)であった。

(3) Poly-13 (高分子量) 前駆体の合成

N-(3-ブロモ-6-ヒドロキシ)フェニルカルバゾール 1.01 g (3.0 mmol) を 5 ml のヘキサフルオロイソプロパノール (HFIP) に溶解し、激しく攪拌させた 6 M の水酸化ナトリウム水溶液 5 ml の中に加えた。1 分ほどそのまま激しく攪拌させた溶液の中に、テトラブチルアンモニウムヒドロスルファート 0.047 g (0.14 mmol) を加え、室温で 5 h 反応を行った。所定時間経過後、反応液に濃塩酸を加え中和し、有機相を分離した。有機相を蒸留水で良く洗浄し、
10 再び有機相を分離し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。乾燥終了後、減圧下で溶媒を流去し、メタノールからの再沈殿により収率 81% (0.63 g) で目的のポリマー前駆体を得た。また、GPC による数平均分子量は 28000 (ポリスチレン換算) であった。

(4) Poly-13 (低分子量) 前駆体の合成

15 N-(3-ブロモ-6-ヒドロキシ)フェニルカルバゾール 1.01 g (3.0 mmol) を 5 ml のトルエンに溶解し、激しく攪拌させた 6 M の水酸化ナトリウム水溶液 5 ml の中に加えた。1 分ほどそのまま激しく攪拌させた溶液の中に、テトラブチルアンモニウムヒドロスルファート 0.047 g (0.14 mmol) を加え、室温で 0.5 h 反応
20 を行った。所定時間経過後、生成した沈殿をろ別した。この沈殿をアセトンで良く洗浄した後、HFIP に溶解し、1 N 塩酸、水で洗浄し無水硫酸ナトリウムで乾燥した。乾燥終了後、減圧下で溶媒を流去し、メタノールからの再沈殿により収率 20% (0.16 g) で目的のポリマー

前駆体を得た。また、GPCによる数平均分子量は2500（ポリスチレン換算）であった。

(5) Polymer-14、27前駆体の合成

N-(2,5-ジブロモ)フェニルカルバゾール1.20g (3.0
5 mmol)を50mlの無水テトラヒドロフランに溶解し、反応装置内
を十分に窒素置換した。-20℃まで冷却した後、n-ブチルリチウム・
ヘキサン溶液2.0ml (2.9mmol)をゆっくり加えた。さらに
10分間攪拌した後、硫黄粉末96mg (3.0mmol)を加え1時
間攪拌した。反応終了後、10mlの水を加えクエンチした後、沈殿を
10 ろ別した。この沈殿をアセトンで良く洗浄した後、HFIPに溶解し、
1N塩酸、水で洗浄し無水硫酸ナトリウムで乾燥した。乾燥終了後、減
圧下で溶媒を流去し、メタノールからの再沈殿により収率20% (0.
16g)で目的のポリマー前駆体を得た。また、GPCによる数平均分
子量は1600（ポリスチレン換算）であった。

15 (6) Polymer-12、16、26、35前駆体の合成

N-(2-ヒドロキシ-3-メチル)フェニルカルバゾール1.64g
(6.0mmol)を10mlのトルエンに溶解し、1分ほどそのまま
激しく攪拌させた溶液の中に、酸化銀8.34g (36.0mmol)
を加えた。室温で12h反応を行った後、濾過にて生成する銀と酸化銀
20 を取り除き、メタノールからの再沈殿により収率91% (1.49g)
で目的のポリマー前駆体を得た。また、GPCによる数平均分子量は2
2000（ポリスチレン換算）であった。

(7) Polymer-18前駆体の合成

N- (3-ブロモ-6-ヒドロキシ) フェニルカルバゾール 1.01 g (3.0 mmol) と 2-ブロモ-5-ヒドロキシフェニルピリジン 75.0 mg (0.3 mmol) を 5 ml のトルエンに溶解し、激しく攪拌させた 6 M の水酸化ナトリウム水溶液 5 ml の中に加えた。1 分ほどそのまま激しく攪拌させた溶液の中に、テトラブチルアンモニウムヒドロスルファート 0.047 g (0.14 mmol) を加え、室温で 5 h 反応を行った。所定時間経過後、反応液に濃塩酸を加え中和し、有機相を分離した。有機相を蒸留水で良く洗浄し、再び有機相を分離し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。乾燥終了後、減圧下で溶媒を流去し、メタノールからの再沈殿により収率 83% (0.68 g) で重合物を得た。GPC による数平均分子量は 21000 (ポリスチレン換算) であった。次に、減圧下、80℃、8 時間過熱乾燥した前述の共重合体 0.5 g とビス (μ-クロロ) テトラキス (2-フェニルピリジン) ジイリジウム (III) { [Ir (ppy) ₂ Cl] ₂ } 0.21 g (0.2 mmol) を 50 ml の脱水トルエンに懸濁させ、窒素気流下、トリフルオロメチルスルホン酸銀 (I) (AgCF₃SO₃) 0.10 g (0.4 mmol) を加え、反応を開始した。6 時間過熱還流を行った後、反応液を 500 ml のメタノール中に投入し沈殿物をろ過によって回収した。沈殿物を塩化メチレン、アセトンで順次洗浄し、減圧化で 60℃、4 時間乾燥を行い目的のポリマー前駆体 0.5 g を得た。

(3) ~ (7) で合成したそれぞれのポリマー前駆体は、下記に示す末端基処理例で処理を行うことで、本発明に係る重合体を合成することができる。なお (8) ~ (10) では Poly-12、13、16 につ

いての合成を示している。

(8) Poly-12 前駆体の末端残基の処理 (アルキル化)

(6) で得られたポリマー前駆体 0.5 g を 50 ml のテトラヒドロフラン (THF) に溶かし、室温で *n*-ブチルリチウム・ヘキサン溶液 (1.6 M, 0.2 ml) を加えた。10 分間攪拌した後、ヨウ化メチル (0.1 ml) を加え、さらに 30 分間攪拌し、冷水 (20 ml) を加え反応を停止した。有機層を THF を用いて抽出し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。乾燥終了後、減圧下で溶媒を流去し、メタノールからの再沈殿により Poly-12 を 0.45 g 得た。GPC による数平均分子量は 22000 (ポリスチレン換算) で、末端処理前のポリマーと大きな違いを示さなかった。また、IR 及び元素分析から水酸基の消失を確認した。なお、本発明における高分子重合体の末端処理は同様に行うことが可能であった。

(9) Poly-13 の末端残基の処理 (アリール (フェニル) 化)

(1) で得られたポリマー前駆体 0.5 g を 50 ml の HFIP に溶解し、窒素気流下、酢酸銅 (II) 18 mg (0.1 mmol)、フェニルボロン酸 20 mg (0.2 mmol)、ピリジン 0.1 ml を加え、室温で 24 時間攪拌した。メタノールを用いて再沈殿を行い、得られた沈殿物をろ別し、アセトン、水、アセトンの順に良く洗浄を行った後。減圧乾燥を行い、Poly-13 を 0.49 g 得た。GPC による数平均分子量は 28000 (ポリスチレン換算) で、末端処理前のポリマーと大きな違いを示さなかった。また、IR 及び元素分析から水酸基および Br 基の消失を確認した。なお、本発明における高分子重合体の末端処

理は同様にして行うことが可能であった。

(10) Polymer 16 の末端残基の処理 (りん光性発光機能基によるキャップ)

(6) で得られたポリマー前駆体 1.0 g と 3-ブロモフェニルピリジン-ビスフェニルピリジンイリジウム (III) 29 mg (0.04 mmol) を 50 ml のピリジンに溶かし、銅粉 20 mg を加え、12 時間加熱還流を行った。反応終了後、反応液をろ過し、その濾液を 500 ml の水に投入した。沈殿した重合体をろ過により集め、クロロホルム、アセトンの順に十分に洗浄し、減圧化で 60℃、4 時間乾燥を行い Polymer 16 を 1.0 g を得た。なお、本発明における高分子重合体末端へのりん光性発光機能基のキャップは同様にして行うことが可能であった。

《有機 EL 素子の構成層》

本発明の有機 EL 素子の構成層について説明する。

15 本発明において、有機 EL 素子の有機層構成の好ましい具体例を以下に示すが、本発明はこれらに限定されない。

- (1) 陽極／発光層／陰極
- (2) 陽極／発光層／陰極バッファ層／陰極
- (3) 陽極／陽極バッファ層／発光層／陰極バッファ層／陰極
- 20 (4) 陽極／正孔輸送層／発光層／陰極
- (5) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極
- (6) 陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極
- (7) 陽極／正孔輸送層／電子阻止層／発光層／電子輸送層／陰極

(8) 陽極／正孔輸送層／電子阻止層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極

(9) 陽極／陽極バッファ層／正孔輸送層／電子阻止層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層／陰極

5 《陽極》

有機EL素子における陽極としては、仕事関数の大きい(4 eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としてはAu等の金属、CuI、インジウムチンオキシド(ITO)、SnO₂、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。また、IDIXO(In₂O₃-ZnO)等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィー法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は(100 μm以上程度)、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また、陽極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10～1000 nm、好ましくは10～200 nmの範囲で選ばれる。

《陰極》

一方、陰極としては、仕事関数の小さい(4 eV以下)金属(電子注入性金属と称する)、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を

電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム／銅混合物、マグネシウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、アルミニウム／酸化アルミニウム（ Al_2O_3 ）混合物、インジウム、リチウム／アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性および酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えばマグネシウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、アルミニウム／酸化アルミニウム（ Al_2O_3 ）混合物、リチウム／アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百 Ω/\square 以下が好ましく、膜厚は通常 10 nm ~ 1000 nm、好ましくは 50 nm ~ 200 nm の範囲で選ばれる。なお、発光を透過させるため、有機 EL 素子の陽極または陰極のいずれか一方が、透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

《バッファ層：陰極バッファ層、陽極バッファ層》

バッファ層は、必要に応じて設け、陰極バッファ層、陽極バッファ層があり、上記のごとく陽極と発光層または正孔輸送層の間、及び陰極と発光層または電子輸送層との間に存在させてもよい。

バッファ層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機 EL 素子とその工業化最前線（1

998年11月30日 エヌ・ティー・エス社発行)」の第2編第2章「電極材料」(123～166頁)に詳細に記載されており、正孔注入層(陽極バッファ層)と電子注入層(陰極バッファ層)とがある。

陽極バッファ層は、特開平9-45479号公報、同9-2600562号公報、同8-288069号公報等にもその詳細が記載されており、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニンバッファ層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファ層、アモルファスカーボンバッファ層、ポリアニリン(エメラルディン)やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子バッファ層等が挙げられる。

10 なかでも、ポリジオキシチオフェン類を用いたものが好ましく、これにより、より一層高い発光輝度と発光効率を示し、かつさらに長寿命である有機EL素子とすることができる。

陰極バッファ層は、特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-74586号公報等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファ層等が挙げられる。

20 上記バッファ層はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるが、その膜厚は0.1nm～100nmの範囲が好ましい。

阻止層は、上記のごとく、有機化合物薄膜の基本構成層の他に必要に応じて設けられるものである。例えば、特開平11-204258号、

同 1 1 - 2 0 4 3 5 9 号、及び「有機 E L 素子とその工業化最前線（1998 年 1 1 月 3 0 日 エヌ・ティー・エス社発行）」の 2 3 7 頁等に記載されている正孔阻止（ホールブロック）層がある。

陰極バッファ層、陽極バッファ層は、上記材料を、例えば、真空
5 蒸着法、スピコート法、キャスト法、インクジェット法、LB 法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。

《阻止層：正孔阻止層、電子阻止層》

正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層であり、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、電子を輸
10 送しつつ正孔を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

正孔阻止層は、正孔輸送層から移動してくる正孔を陰極に到達するのを阻止する役割と、陰極から注入された電子を効率よく発光層の方向に輸送することができる化合物により形成される。正孔阻止層を構成する
15 材料に求められる物性としては、電子移動度が高く正孔移動度が低いこと、及び正孔を効率的に発光層内に閉じこめるために、発光層のイオン化ポテンシャルより大きいイオン化ポテンシャルの値を有するか、発光層のバンドギャップより大きいバンドギャップを有することが好ましい。正孔阻止材料としては、スチリル化合物、トリアゾール誘導体、フェナ
20 ントロリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ボロン誘導体の少なくとも 1 種を用いることも本発明の効果を得るうえで有効である。

その他の化合物例として、特開 2 0 0 3 - 3 1 3 6 7 号、同 2 0 0 3 - 3 1 3 6 8 号、特許第 2 7 2 1 4 4 1 号等に記載の例示化合物が挙げ

られる。

一方、電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層であり、正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

この正孔阻止層、電子阻止層は、上記材料を、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、インクジェット法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。

《発光層》

10 本発明に係る発光層は、電極または電子輸送層、正孔輸送層等から注入されてくる電子及び正孔が再結合して発光する層であり、発光する部分は発光層の層内であっても発光層と隣接層との界面であってもよい。

発光層に使用される発光材料には、従来公知の蛍光性化合物やリン光性化合物を用いることができる。

15 本発明においては、蛍光性化合物として、前述した一般式(2)で表される繰り返し単位を少なくとも一つ含む重合体で、Xが蛍光性基である重合体を用いるのが好ましい。これにより、一層高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに一層駆動電力を抑えることができる。

本発明においては、発光材料としてリン光性化合物を用いることが本
20 発明の効果をj得るうえで好ましい。リン光性化合物は、励起三重項からの発光が観測される化合物であり、室温(25℃)にてリン光発光する化合物であり、リン光量子収率が、25℃において0.01以上の化合物である。リン光量子収率は好ましくは0.1以上である。

上記リン光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光IIの398頁(1992年版、丸善)に記載の方法により測定できる。溶液中でのリン光量子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、本発明に用いられるリン光性化合物は、任意の溶媒の何れかにおいて上記リン光量子収率が達成されればよい。

リン光性化合物の発光は、原理としては2種挙げられ、一つはキャリアが輸送されるホスト化合物上でキャリアの再結合が起こってホスト化合物の励起状態が生成し、このエネルギーをリン光性化合物に移動させることでリン光性化合物からの発光を得るというエネルギー移動型、もう一つはリン光性化合物がキャリアトラップとなり、リン光性化合物上でキャリアの再結合が起こりリン光性化合物からの発光が得られるというキャリアトラップ型であるが、いずれの場合においても、リン光性化合物の励起状態のエネルギーはホスト化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

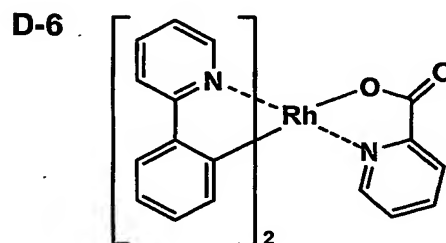
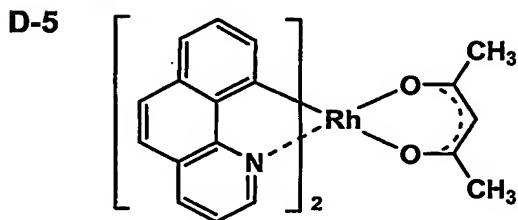
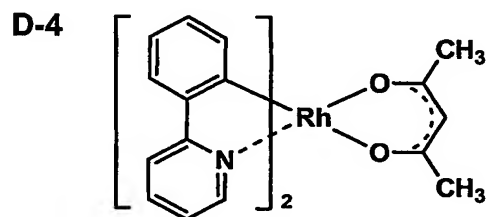
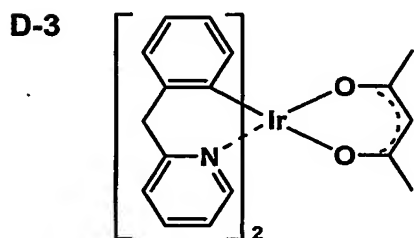
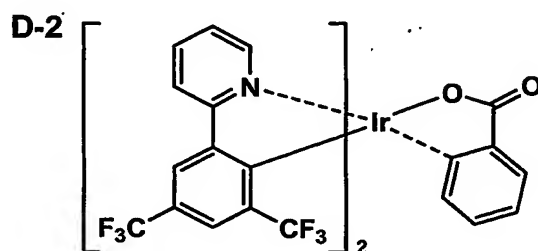
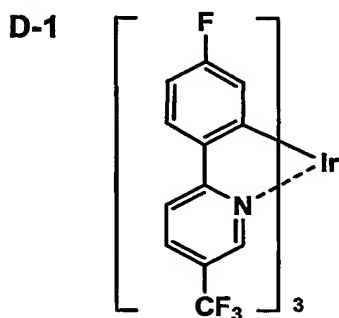
リン光性化合物は、有機EL素子の発光層に使用される公知のものの中から適宜選択して用いることができる。

本発明においては、リン光性化合物として、前述した一般式(2)で表される繰り返し単位を少なくとも一つ含む重合体で、Xがリン光性基である重合体を用いるのが好ましい。これにより、一層高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに一層駆動電力を抑えることができる。

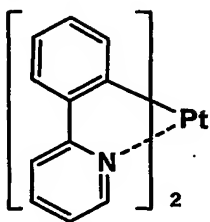
また、他に、リン光性化合物として、元素の周期律表で8族の金属を含有する錯体系化合物を用いるのも好ましく、更に好ましくは、イリジウム化合物、オスミウム化合物、または白金化合物(白金錯体系化合物)、

ロジウム化合物、パラジウム化合物、希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

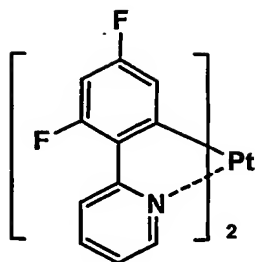
以下に、錯体系化合物のリン光性化合物の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。これらの化合物は、例えば、*Inorg. Chem.* 40巻、1704～1711に記載の方法等により合成できる。



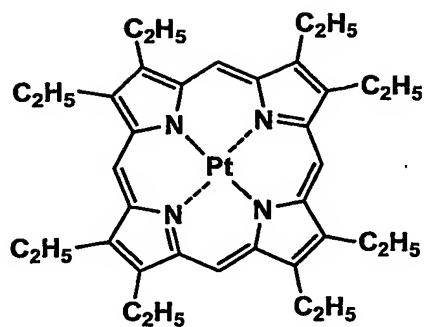
Pt-1



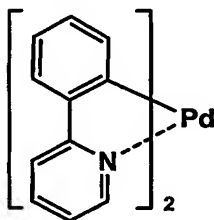
Pt-2



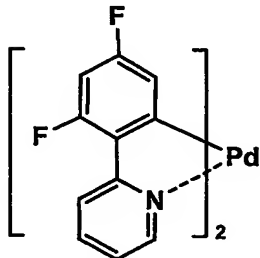
Pt-3



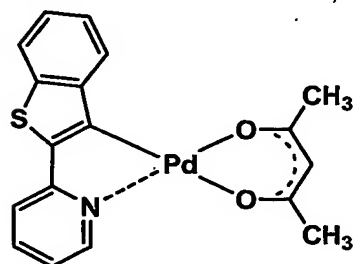
Pd-1



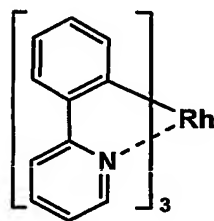
Pd-2



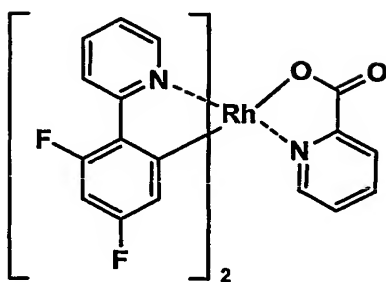
Pd-3



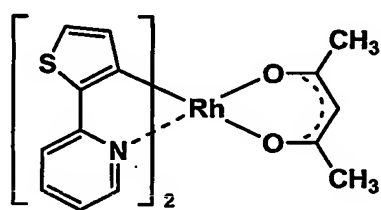
Rh-1



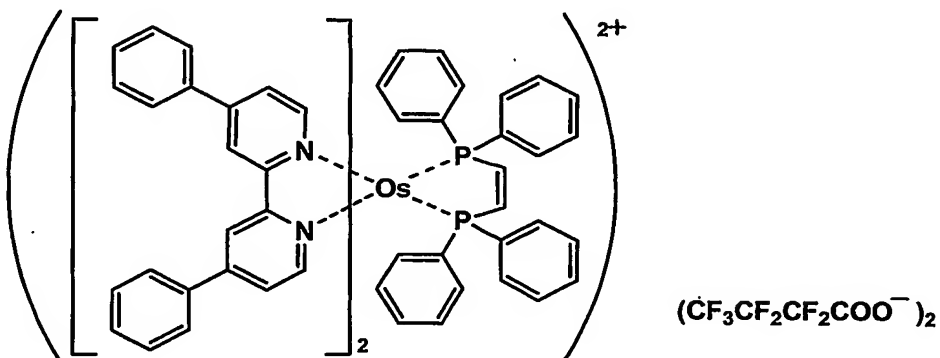
Rh-2



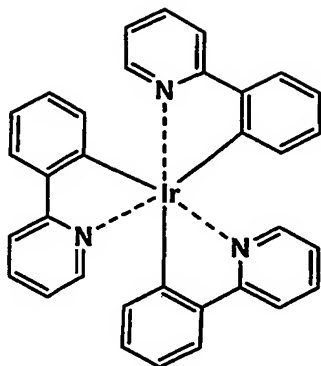
Rh-3



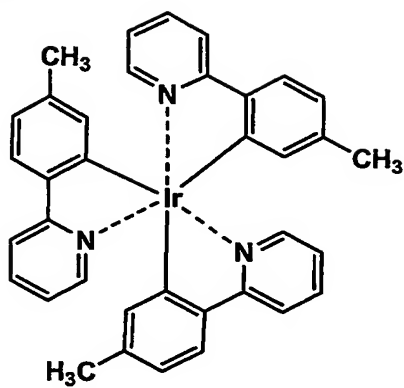
A-1



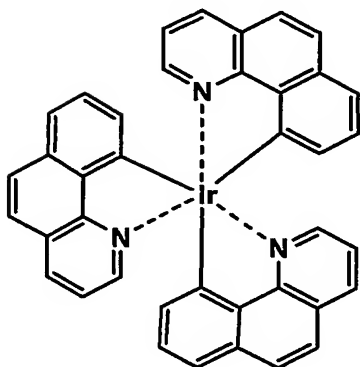
Ir-1



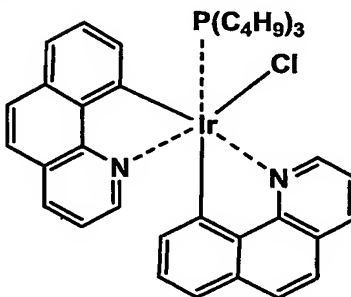
Ir-2



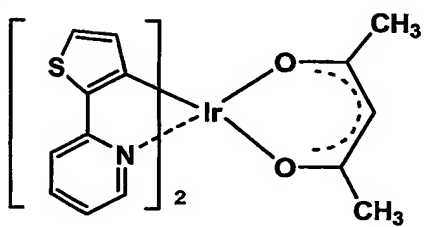
Ir-3



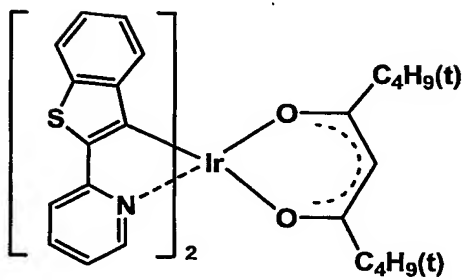
Ir-4



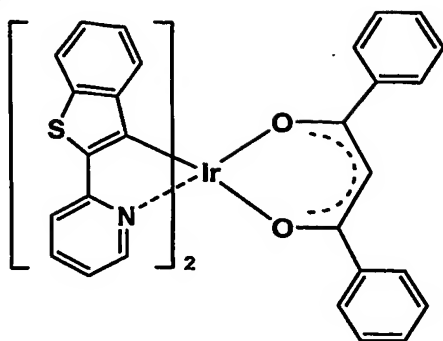
Ir-5



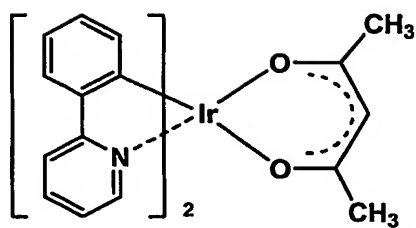
Ir-6



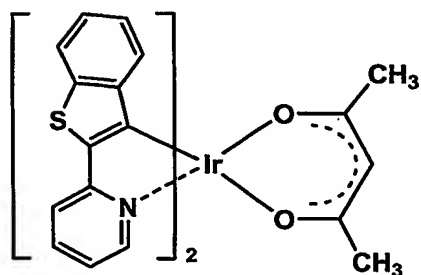
Ir-7



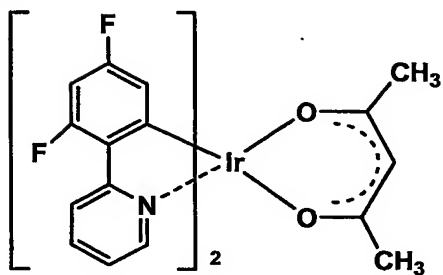
Ir-8



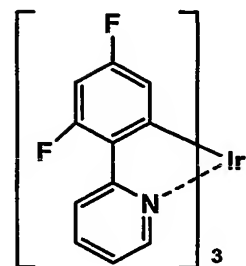
Ir-9



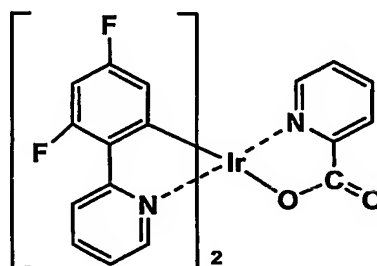
Ir-10



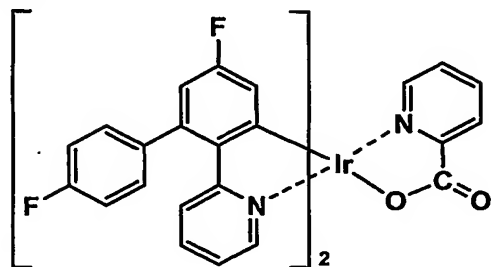
Ir-11



Ir-12



Ir-13



また、発光層には、他にホスト化合物を含有してもよい。

本発明においてホスト化合物は、発光層に含有される化合物のうちで

室温（25℃）においてリン光発光のリン光量子収率が、0.01未満の化合物である。

本発明においては、ホスト化合物として前述した一般式（1）で表される繰り返し単位を少なくとも一つ含む重合体を発光層に含有させるのが好ましい。これにより、一層高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに一層駆動電力が抑えることができる。

また、ホスト化合物として、前述した一般式（2）で表される繰り返し単位を少なくとも一つ含む重合体で、Xが正孔輸送性基である重合体を発光層に含有させるのも好ましい。これにより、一層高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに一層駆動電力が抑えることができる。

さらに、公知のホスト化合物を複数種併用して用いてもよい。ホスト化合物を複数種もちいることで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素子を高効率化することができる。

これらの公知のホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、かつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高T_g（ガラス転移温度）である化合物が好ましい。

公知のホスト化合物の具体例としては、以下の文献に記載されている化合物が挙げられる。

特開2001-257076、特開2002-308855、特開2001-313179、特開2002-319491、特開2001-357977、特開2002-334786、特開2002-8860、特開2002-334787、特開2002-15871、特開2002-334788、特開2002-43056、特開2002-334

789、特開2002-75645、特開2002-338579、特開2002-105445、特開2002-343568、特開2002-141173、特開2002-352957、特開2002-203683、特開2002-363227、特開2002-231453、
5. 特開2003-3165、特開2002-234888、特開2003-27048、特開2002-255934、特開2002-260861、特開2002-280183、特開2002-299060、特開2002-302516、特開2002-305083、特開2002-305084、特開2002-308837等。

10 また、発光層は、ホスト化合物としてさらに蛍光極大波長を有するホスト化合物を含有していてもよい。この場合、他のホスト化合物とリン光性化合物から蛍光性化合物へのエネルギー移動で、有機EL素子としての電界発光は蛍光極大波長を有する他のホスト化合物からの発光も得られる。蛍光極大波長を有するホスト化合物として好ましいのは、溶液
15 状態で蛍光量子収率が高いものである。ここで、蛍光量子収率は10%以上、特に30%以上が好ましい。具体的な蛍光極大波長を有するホスト化合物としては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、
20 ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素等が挙げられる。蛍光量子収率は、前記第4版実験化学講座7の分光IIの362頁（1992年版、丸善）に記載の方法により測定することができる。

本明細書の発光する色は、「新編色彩科学ハンドブック」（日本色彩

学会編、東京大学出版会、1985)の108頁の図4.16において、分光放射輝度計CS-1000(ミノルタ製)で測定した結果をCIE色度座標に当てはめたときの色で決定される。

本発明においては、発光材料であるリン光性化合物のリン光発光極大波長としては特に制限されるものではなく、原理的には、中心金属、配位子、配位子の置換基等を選択することで得られる発光波長を変化させることができるが、リン光性化合物のリン光発光波長が380～480nmにリン光発光の極大波長を有することが好ましい。このようなリン光発光波長を有するものとしては、青色に発光する有機EL素子や白色に発光する有機EL素子が挙げられる。

発光層に、リン光性化合物を複数種用いることで、異なる発光を混ぜることが可能となり、これにより任意の発光色を得ることができる。リン光性化合物の種類、ドープ量を調整することで白色発光が可能であり、照明、バックライトへの応用もできる。

発光層は、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法、インクジェット法等の公知の薄膜化法により製膜して形成することができる。

発光層は、本発明に係る重合体を含有させて塗布法により製造されることが好ましい。本発明に係る重合体は、特に、スピンコート法や、インクジェット法等の塗布法による製造が非常に適しており、これらの方法で製造を行うことにより製造を容易にすることができ、さらに大面積の有機EL素子や白色発光型有機EL素子を作製が容易となり好ましい。

発光層としての膜厚は特に制限はないが、通常は5nm～5μm、好

ましくは5 nm～200 nmの範囲で選ばれる。

《正孔輸送層》

正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。正孔輸送層、電子

5 輸送層は単層もしくは複数層設けることができる。

正孔輸送材料としては、特に制限はなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷注入輸送材料として慣用されているものやEL素子の正孔注入層、正孔輸送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

10 本発明においては、正孔輸送材料として、前述した一般式(2)で表される繰返し単位を少なくとも一つ含む重合体で、Xが正孔輸送性基である重合体を正孔輸送層に含有させるのも好ましい。これにより、一層高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに一層駆動電力が抑えることができる。

15 他に、正孔輸送材料としては、例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘
20 導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また、導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

正孔輸送材料としては、上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、

特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N' - テトラフェニル - 4, 4' - ジアミノフェニル ; N, N' - ジフェニル - N, N' - ビス (3 - メチルフェニル) -
5 [1, 1' - ビフェニル] - 4, 4' - ジアミン (TPD) ; 2, 2 -
ビス (4 - ジ - p - トリルアミノフェニル) プロパン ; 1, 1 - ビス (4 -
ジ - p - トリルアミノフェニル) シクロヘキサン ; N, N, N', N' -
テトラ - p - トリル - 4, 4' - ジアミノビフェニル ; 1, 1 - ビス
(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル) - 4 - フェニルシクロヘキサ
10 ン ; ビス (4 - ジメチルアミノ - 2 - メチルフェニル) フェニルメタン ;
ビス (4 - ジ - p - トリルアミノフェニル) フェニルメタン ; N, N' -
ジフェニル - N, N' - ジ (4 - メトキシフェニル) - 4, 4' - ジ
アミノビフェニル ; N, N, N', N' - テトラフェニル - 4, 4' -
ジアミノジフェニルエーテル ; 4, 4' - ビス (ジフェニルアミノ) ク
15 オードリフェニル ; N, N, N - トリ (p - トリル) アミン ; 4 - (ジ
- p - トリルアミノ) - 4' - [4 - (ジ - p - トリルアミノ) スチリ
ル] スチルベン ; 4 - N, N - ジフェニルアミノ - (2 - ジフェニルビ
ニル) ベンゼン ; 3 - メトキシ - 4' - N, N - ジフェニルアミノスチ
ルベンゼン ; N - フェニルカルバゾール、さらには、米国特許第 5, 0
20 6 1, 5 6 9 号明細書に記載されている 2 個の縮合芳香族環を分子内に
有するもの、例えば、4, 4' - ビス [N - (1 - ナフチル) - N - フェ
ニルアミノ] ビフェニル (NPD)、特開平 4 - 3 0 8 6 8 8 号公報
に記載されているトリフェニルアミンユニットが 3 つスターバースト型

に連結された4, 4', 4''-トリス〔N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ〕トリフェニルアミン(MTDATA)等が挙げられる。

更に、これらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

また、p型-Si, p型-SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。

また、本発明においては正孔輸送層の正孔輸送材料は415nm以下に蛍光極大波長を有することが好ましい。すなわち、正孔輸送材料は、正孔輸送能を有しつつかつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高T_gである化合物が好ましい。

この正孔輸送層は、上記正孔輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、インクジェット法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5～5000nm程度である。この正孔輸送層は、上記材料の一種または二種以上からなる一層構造であってもよい。

《電子輸送層》

電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で電子注入層、正孔阻止層も電子輸送層に含まれる。電子輸送層は単層もしくは複数層設けることができる。

従来、単層の電子輸送層、及び複数層とする場合は発光層に対して陰極側に隣接する電子輸送層に用いられる電子輸送材料としては、電子輸

送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

本発明においては、電子輸送材料として、前述した一般式（２）で表される繰り返し単位を少なくとも一つ含む重合体で、Xが電子輸送性基
5 である重合体を電子輸送層に含有させるのも好ましい。これにより、一層高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに一層駆動電力が抑えることができる。

他に、電子輸送材料としては、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェ
ニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フ
10 レオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘
導体、オキサジアゾール誘導体などが挙げられる。さらに、上記オキサ
ジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子
に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノ
キサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いる
15 ことができる。これらの電子輸送材料を前述した電子輸送性部分として
も本発明の効果をj得ることができ好ましい。

さらに、電子輸送層は、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、その材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。

20 更に、これらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えばトリス（8-キノリノール）アルミニウム（Alq）、トリス（5,7-ジクロロ-8-

キノリノール) アルミニウム、トリス (5, 7-ジブromo-8-キノリノール) アルミニウム、トリス (2-メチル-8-キノリノール) アルミニウム、トリス (5-メチル-8-キノリノール) アルミニウム、ビス (8-キノリノール) 亜鉛 (Znq) など、及びこれらの金属錯体の中心金属が In、Mg、Cu、Ca、Sn、Ga 又は Pb に置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができる。その他、メタルフリー若しくはメタルフタロシアニン、又はそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基などで置換されているものも、電子輸送材料として好ましく用いることができる。また、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、正孔輸送層と同様に、n型-Si、n型-SiCなどの無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

電子輸送層に用いられる好ましい化合物は、415nm以下に蛍光極大波長を有することが好ましい。すなわち、電子輸送層に用いられる化合物は、電子輸送能を有しつつかつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高T_gである化合物が好ましい。

この電子輸送層は、上記電子輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、インクジェット法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。電子輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5～5000nm程度である。この正孔輸送層は、上記材料の一種または二種以上からなる一層構造であってもよい。

《基体 (基板、基材、支持体等ともいう) 》

本発明の有機EL素子に係る基体としては、ガラス、プラスチック等の種類には特に限定はなく、また、透明のものであれば特に制限はないが、好ましく用いられる基板としては例えばガラス、石英、光透過性樹脂フィルムを挙げることができる。特に好ましい基体は、有機EL素子
5 にフレキシブル性を与えることが可能な樹脂フィルムである。

樹脂フィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタレート（PEN）、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリフェニレンスルフィド、ポリアリレート、ポリイミド、ポリカーボネート（PC）、セルローストリアセテート（TAC）、セルロースアセテートプロピオネート（CAP）等からなるフィルム等が挙げられる。
10

樹脂フィルムの表面には、無機物もしくは有機物の被膜またはその両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよい。

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光の室温における外部取り出し効率は、1%以上であることが好ましく、より好ましくは2%以上である。ここに、外部取り出し量子効率（%）＝有機EL素子外部に発光した光子数／有機EL素子に流した電子数×100である。
15

また、カラーフィルター等の色相改良フィルター等を併用してもよい。

本発明の多色表示装置は少なくとも2種類の異なる発光極大波長を有する有機EL素子からなるが、有機EL素子を作製する好適な例を説明する。
20

《有機EL素子の作製方法》

本発明の有機EL素子の作製方法の一例として、陽極／陽極バッファ

一層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極バッファ層／陰極からなる有機EL素子の作製法について説明する。

まず適当な基体上に、所望の電極物質、例えば、陽極用物質からなる薄膜を、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $10\text{ nm}\sim 200\text{ nm}$ の膜厚になるように、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陽極を作製する。
次に、この上に素子材料である陽極バッファ層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、陰極バッファ層の有機化合物薄膜を形成させる。

この有機化合物薄膜の薄膜化の方法としては、前記の如くスピンコート法、キャスト法、インクジェット法、蒸着法、印刷法、スプレー法等があるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法、スピンコート、インクジェット法またはスプレー法が特に好ましい。さらに層ごとに異なる製膜法を適用してもよい。製膜に蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は、使用する化合物の種類等により異なるが、一般にボート加熱温度 $50\sim 450^{\circ}\text{C}$ 、真空度 $10^{-6}\text{ Pa}\sim 10^{-2}\text{ Pa}$ 、蒸着速度 $0.01\text{ nm}\sim 50\text{ nm/秒}$ 、基板温度 $-50^{\circ}\text{C}\sim 300^{\circ}\text{C}$ 、膜厚 $0.1\text{ nm}\sim 5\text{ }\mu\text{m}$ の範囲で適宜選ぶことが望ましい。

これらの層の形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下好ましくは $50\text{ nm}\sim 200\text{ nm}$ の範囲の膜厚になるように、例えば、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陰極を設けることにより、所望の有機EL素子が得られる。この有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる製膜法を施してもかまわない。その際、作業を

乾燥不活性ガス雰囲気下で行う等の配慮が必要となる。

本発明の表示装置は、発光層形成時のみシャドーマスクを設け、他層は共通であるのでシャドーマスク等のパターニングは不要であり、一面に蒸着法、キャスト法、スピコート法、インクジェット法、印刷法等

5 で層を形成できる。

発光層のみパターニングを行う場合、その方法に限定はないが、好ましくは蒸着法、インクジェット法、印刷法である。蒸着法を用いる場合においてはシャドーマスクを用いたパターニングが好ましい。

また作製順序を逆にして、陰極、陰極バッファ層、電子輸送層、発
10 光層、正孔輸送層、陽極バッファ層、陽極の順に作製することも可能である。

このようにして得られた多色表示装置に、直流電圧を印加する場合には、陽極を＋、陰極を－の極性として電圧 2 ～ 4 0 V 程度を印加すると、発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れずに
15 発光は全く生じない。さらに、交流電圧を印加する場合には、陽極が＋、陰極が－の状態になったときのみ発光する。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

本発明の表示装置は、本発明の有機 EL 素子を用いており、表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源として用いることができる。表示デ
20 バイス、ディスプレイにおいて、青、赤、緑発光の 3 種の有機 EL 素子を用いることにより、フルカラーの表示が可能となる。

表示デバイス、ディスプレイとしてはテレビ、パソコン、モバイル機器、AV 機器、文字放送表示、自動車内の情報表示等が挙げられる。特

に静止画像や動画像を再生する表示装置として使用してもよく、動画再生用の表示装置として使用する場合は単純マトリックス（パッシブマトリックス）方式でもアクティブマトリックス方式でもどちらでもよい。

- 5 本発明の照明装置は、本発明の有機EL素子を用いており、本発明の有機EL素子のリン光性化合物を調節して白色に発光させ、家庭用照明、車内照明、時計のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるがこれに限定するものではない。また、液晶表示装置等のバック
- 10 ライトとしても用いることができる。

また、本発明に係る有機EL素子に共振器構造を持たせた有機EL素子として用いてもよい。

- このような共振器構造を有した有機EL素子の使用目的としては、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光セン
- 15 サーの光源等が挙げられるが、これらに限定されない。また、レーザー発振をさせることにより、上記用途に使用してもよい。

- 本発明の有機EL素子は、前述したように照明用や露光光源のような
- 1 種のランプとして使用してもよいし、画像を投影するタイプのプロジェクション装置や、静止画像や動画像を直接視認するタイプの表示装置
- 20 （ディスプレイ）として使用してもよい。動画再生用の表示装置として使用する場合は単純マトリックス（パッシブマトリックス）方式でもアクティブマトリックス方式でもどちらでもよい。または、異なる発光色を有する本発明の有機EL素子を3種以上使用することにより、フ

ルカラー表示装置を作製することが可能である。または、一色の発光色、例えば白色発光をカラーフィルターを用いてBGRにし、フルカラー化することも可能である。さらに、有機ELの発光色を色変換フィルターを用いて他色に変換しフルカラー化することも可能であるが、その場合、

5 有機EL発光の λ_{max} は480nm以下であることが好ましい。

本発明の有機EL素子から構成される表示装置の一例を図面に基づいて以下に説明する。

第1図は、有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。有機EL素子の発光により画像情報の表示を行う、例えば、

10 携帯電話等のディスプレイの模式図である。

ディスプレイ1は、複数の画素を有する表示部A、画像情報に基づいて表示部Aの画像走査を行う制御部B等からなる。

制御部Bは、表示部Aと電氣的に接続され、複数の画素それぞれに外部からの画像情報に基づいて走査信号と画像データ信号を送り、走査信号により走査線毎の画素が画像データ信号に応じて順次発光して画像走査を行って画像情報を表示部Aに表示する。

15

第2図は、表示部Aの模式図である。

表示部Aは基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と、複数の画素3等とを有する。表示部Aの主要な部材の説明を以下に行う。

20 第2図においては、画素3の発光した光が、白矢印方向（下方向）へ取り出される場合を示している。

配線部の走査線5及び複数のデータ線6は、それぞれ導電材料からなり、走査線5とデータ線6は格子状に直交して、直交する位置で画素3

に接続している（詳細は図示せず）。

画素 3 は、走査線 5 から走査信号が印加されると、データ線 6 から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素を、適宜、同一基板上に並置することによって、フルカラー表示が可能となる。

次に、画素の発光プロセスを説明する。

第 3 図は、画素の模式図である。

画素は、有機 EL 素子 10、スイッチングトランジスタ 11、駆動トランジスタ 12、コンデンサ 13 等を備えている。複数の画素に有機 EL 素子 10 として、赤色、緑色、青色発光の有機 EL 素子を用い、これらを同一基板上に並置することでフルカラー表示を行うことができる。

第 3 図において、制御部 B からデータ線 6 を介してスイッチングトランジスタ 11 のドレインに画像データ信号が印加される。そして、制御部 B から走査線 5 を介してスイッチングトランジスタ 11 のゲートに走査信号が印加されると、スイッチングトランジスタ 11 の駆動がオンし、ドレインに印加された画像データ信号がコンデンサ 13 と駆動トランジスタ 12 のゲートに伝達される。

画像データ信号の伝達により、コンデンサ 13 が画像データ信号の電位に応じて充電されるとともに、駆動トランジスタ 12 の駆動がオンする。駆動トランジスタ 12 は、ドレインが電源ライン 7 に接続され、ソースが有機 EL 素子 10 の電極に接続されており、ゲートに印加された画像データ信号の電位に応じて電源ライン 7 から有機 EL 素子 10 に電流が供給される。

制御部 B の順次走査により走査信号が次の走査線 5 に移ると、スイッチングトランジスタ 1 1 の駆動がオフする。しかし、スイッチングトランジスタ 1 1 の駆動がオフしてもコンデンサ 1 3 は充電された画像データ信号の電位を保持するので、駆動トランジスタ 1 2 の駆動はオン状態
5 が保たれて、次の走査信号の印加が行われるまで有機 E L 素子 1 0 の発光が継続する。順次走査により次に走査信号が印加されたとき、走査信号に同期した次の画像データ信号の電位に応じて駆動トランジスタ 1 2 が駆動して有機 E L 素子 1 0 が発光する。

すなわち、有機 E L 素子 1 0 の発光は、複数の画素それぞれの有機 E
10 L 素子 1 0 に対して、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタ 1 1 と駆動トランジスタ 1 2 を設けて、複数の画素 3 それぞれの有機 E L 素子 1 0 の発光を行っている。このような発光方法をアクティブマトリクス方式と呼んでいる。

ここで、有機 E L 素子 1 0 の発光は、複数の階調電位を持つ多値の画
15 像データ信号による複数の階調の発光でもよいし、2 値の画像データ信号による所定の発光量のオン、オフでもよい。

また、コンデンサ 1 3 の電位の保持は、次の走査信号の印加まで継続して保持してもよいし、次の走査信号が印加される直前に放電させてもよい。

20 本発明においては、上述したアクティブマトリクス方式に限らず、走査信号が走査されたときのみデータ信号に応じて有機 E L 素子を発光させるパッシブマトリクス方式の発光駆動でもよい。

第 4 図は、パッシブマトリクス方式による表示装置の模式図である。

第4図において、複数の走査線5と複数の画像データ線6が画素3を挟んで対向して格子状に設けられている。

順次走査により走査線5の走査信号が印加されたとき、印加された走査線5に接続している画素3が画像データ信号に応じて発光する。パッシブマトリクス方式では画素3にアクティブ素子がなく、製造コストの低減が計れる。

【実施例】

以下、実施例を挙げて本発明を詳細に説明するが、本発明の態様はこれに限定されない。

10 《実施例1》

<有機EL素子1-1-1～1-1-6、1-2-1～1-2-4の作製>

(1) 有機EL素子1-1-1の作製

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO（インジウムチンオキシド）を100nm製膜した基板（NHテクノグラス社製NA45）にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ボートにNPDを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにCBPを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-1を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにバソキuproイン（BCP）を200mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

次いで、真空槽を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、NPDの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/sec で透明支持基板に蒸着し 45 nm 正孔輸送層を設けた。

更にCBPとIr-1の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度 0.1 nm/sec 、 0.006 nm/sec で正孔輸送層上に共蒸着して 30 nm の発光層を設けた。

更にBCPの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/sec で前記発光層上に蒸着して膜厚 30 nm の電子輸送層を設けた。

10 なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

引き続き陰極バッファ層としてフッ化リチウム 0.5 nm を蒸着し、更に、アルミニウム 110 nm を蒸着して陰極を形成し、有機EL素子1-1-1を作製した。

有機EL素子1-1-1の電子輸送層、発光層、正孔輸送層に用いた化合物を表1、表2に示すものに変更した以外は、有機EL素子1-1-1と同様の方法で有機EL素子1-1-2～1-1-6、1-2-1～1-2-4を作製した。

15

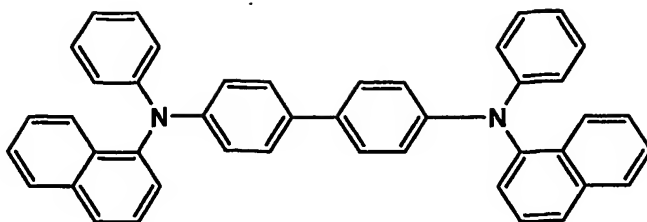
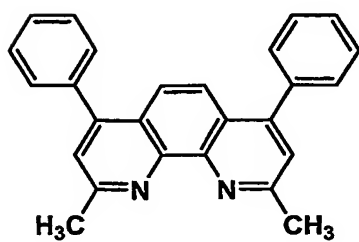
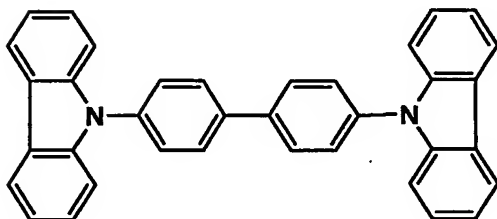
NPD**BCP****CBP**

表 1

有機 EL 素子	正孔輸送層	発光層	電子輸送層	備考
1-1-1	NPD	CBP Ir-1	BCP	比較例
1-1-2	poly-33	poly-33	BCP	本発明
1-1-3	poly-5	poly-5	BCP	本発明
1-1-4	poly-10	poly-10	BCP	本発明
1-1-5	poly-13	poly-13	BCP	本発明
1-1-6	poly-16	poly-16	BCP	本発明

表 2

有機EL素子	正孔輸送層	発光層	電子輸送層	備 考
1-2-1	NPD	CBP E-5	BCP	比較例
1-2-2	Poly-12	Poly-12 E-5	BCP	本発明
1-2-3	Poly-14	Poly-14 E-5	BCP	本発明
1-2-4	NPD	Poly-1	BCP	本発明

〈有機 EL 素子 1-1-1～1-1-6、1-2-1～1-2-4 の評価〉

- 5 得られた有機 EL 素子 1-1-1～1-1-6、1-2-1～1-2-4 について下記に示す評価を行った。

(外部取りだし量子効率)

作製した有機 EL 素子について、23℃、乾燥窒素ガス雰囲気下で 2.5 mA/cm² 定電流を印加した時の外部取り出し量子効率 (%) を測定した。なお測定には同様に分光放射輝度計 CS-1000 (ミノルタ製) を用いた。

10

(発光寿命)

23℃、乾燥窒素ガス雰囲気下で 2.5 mA/cm² の一定電流で駆

動したときに、輝度が発光開始直後の輝度（初期輝度）の半分に低下するのに要した時間を測定し、これを半減寿命時間（ $\tau_{0.5}$ ）として寿命の指標とした。なお測定には分光放射輝度計CS-1000（ミノルタ製）を用いた。

5 （駆動電圧）

温度23℃、感想窒素ガス雰囲気下で発光開始の電圧を測定した。なお、発光開始の電圧は、輝度50cd/m²以上となったときの電圧値を測定した。輝度の測定には分光放射輝度計CS-1000（ミノルタ製）を用いた。

- 10 有機EL素子1-1-1～1-1-6の外部取り出し量子効率、発光寿命、駆動電圧の測定結果は、有機EL素子1-1-1を100とした時の相対値で表3に示した。有機EL素子1-2-1～1-2-4の外部取り出し量子効率、発光寿命、駆動電圧の測定結果は、有機EL素子1-2-1を100とした時の相対値で表4に示した。

表 3

有機 EL 素子	外部取り出し量子効率 (相対値)	発光寿命 (相対値)	駆動電圧 (相対値)	備考
1-1-1	100	100	100	比較例
1-1-2	225	275	89	本発明
1-1-3	180	149	87	本発明
1-1-4	197	512	79	本発明
1-1-5	112	136	92	本発明
1-1-6	160	654	90	本発明

表 4

有機 EL 素子	外部取り出し量子効率 (相対値)	発光寿命 (相対値)	駆動電圧 (相対値)	備考
1-2-1	100	100	100	比較例
1-2-2	191	378	91	本発明
1-2-3	201	149	74	本発明
1-2-4	121	507	90	本発明

表 3、表 4 より明らかなように、本発明の有機 EL 素子は、発光輝度、
発光効率、発光寿命が高く、さらに駆動電力が抑えられていることが分
5 かった。

《実施例 2》

<有機 EL 素子 2-1-1 ~ 2-1-16、2-2-1 ~ 2-2-5
の作製>

陽極として 100 mm × 100 mm × 1.1 mm のガラス基板上に I
10 TO (インジウムチンオキシド) を 100 nm 成膜した基板 (NH テク
ノグラス社製 NA-45) にパターニングを行った後、この ITO 透明
電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、
乾燥窒素ガスで乾燥し、UV オゾン洗浄を 5 分間行なった。この透明支
持基板上にポリビニルカルバゾール (PVK) 30 mg と Ir-1 を 1.

8 m g とをジクロロベンゼン 1 m l に溶解させ、1 0 0 0 r p m、5 s e c の条件下、スピコートし（膜厚約 1 0 0 n m）、6 0 度で 1 時間真空乾燥し、発光層とした。

これを真空蒸着装置に取付け、次いで、真空槽を 4×10^{-4} P a ま
5 で減圧し、陰極バッファ層としてフッ化リチウム 0. 5 n m 及び陰極としてアルミニウム 1 1 0 n m を蒸着して陰極を形成した。最後にガラス封止をし、有機 E L 素子 2 - 1 - 1 を作製した。

有機 E L 素子 2 - 1 - 1 の発光層に用いた P V K と I r - 1 を表 5、
表 6 に示すものに変更した以外は、有機 E L 素子 2 - 1 - 1 と同様の方
10 法で有機 E L 素子 2 - 1 - 2 ~ 2 - 1 - 1 6、2 - 2 - 1 ~ 2 - 2 - 5 を作製した。

表 5

有機 EL 素子	発光層	備考
2-1-1	PVK/Ir-1	比較例
2-1-2	poly-12/Ir-1	本発明
2-1-3	poly-15/Ir-1	本発明
2-1-4	poly-18	本発明
2-1-5	poly-19	本発明
2-1-6	poly-8	本発明
2-1-7	poly-13	本発明
2-1-8	poly-27	本発明
2-1-9	poly-28	本発明
2-1-10	poly-46	本発明
2-1-11	poly-39	本発明
2-1-12	P0-8/Ir-1	本発明
2-1-13	P0-1/P0-8/Ir-1	本発明
2-1-14	P0-11/Ir-1	本発明
2-1-15	P0-12/Ir-1	本発明
2-1-16	P0-19	本発明

表 6

有機EL素子	発光層	備考
2-2-1	PVK E-5	比較例
2-2-2	Poly-12 E-5	本発明
2-2-3	Poly-34	本発明
2-2-4	Poly-36	本発明
2-2-5	Poly-38	本発明

〈有機 EL 素子 2-1-1～2-1-16、2-2-1～2-2-5
の評価〉

- 5 得られた有機 EL 素子 2-1-1～2-1-16、2-2-1～2-2-5 について実施例 1 と同じ評価を行った。

有機 EL 素子 2-1-1～2-1-16 の外部取り出し量子効率、発

光寿命、駆動電圧の測定結果は、有機EL素子2-1-1を100とした時の相対値で表7に示した。有機EL素子2-2-1～2-2-5の外部取り出し量子効率、発光寿命、駆動電圧の測定結果は、有機EL素子2-2-1を100とした時の相対値で表8に示した。

5 表7

有機EL素子	外部取り出し量子効率 (相対値)	発光寿命 (相対値)	駆動電圧 (相対値)	備考
2-1-1	100	100	100	比較例
2-1-2	152	341	91	本発明
2-1-3	163	297	85	本発明
2-1-4	156	310	78	本発明
2-1-5	136	720	76	本発明
2-1-6	200	300	71	本発明
2-1-7	120	168	91	本発明
2-1-8	191	410	80	本発明
2-1-9	176	612	74	本発明
2-1-10	223	554	69	本発明
2-1-11	235	688	68	本発明
2-1-12	250	711	75	本発明
2-1-13	255	703	73	本発明
2-1-14	231	662	76	本発明
2-1-15	237	901	79	本発明
2-1-16	251	876	80	本発明

表8

有機EL素子	外部取り出し量子効率 (相対値)	発光寿命 (相対値)	駆動電圧 (相対値)	備考
2-2-1	100	100	100	比較例
2-2-2	167	327	87	本発明
2-2-3	208	288	78	本発明
2-2-4	231	178	71	本発明
2-2-5	190	400	74	本発明

表7、表8より明らかなように、本発明の有機EL素子は、発光輝度、発光効率、発光寿命が高く、さらに駆動電力が抑えられていることが分

かった。

《実施例 3》

〈フルカラー表示装置〉

（青色発光有機 EL 素子） 実施例 2 で作製した有機 EL 素子 2-1-5
5 5 において、Poly-19 を Poly-47 に変更した以外は有機 EL 素子 2-1-5 と同様の方法で作製した有機 EL 素子 2-1-5 B を用いた。

（緑色発光有機 EL 素子）

実施例 2 で作製した有機 EL 素子 2-1-5 を用いた。

10 （赤色発光有機 EL 素子）

実施例 2 で作製した有機 EL 素子 2-1-5 において、Poly-19 を Poly-48 に変更した以外は有機 EL 素子 2-1-5 と同様の方法で作製した有機 EL 素子 2-1-5 R を用いた。

上記の赤色、緑色及び青色発光有機 EL 素子を、同一基板上に並置し、
15 第 1 図に記載の形態を有するアクティブマトリクス方式フルカラー表示装置を作製し、第 2 図には、作製した前記表示装置の表示部 A の模式図のみを示した。即ち、同一基板上に、複数の走査線 5 及びデータ線 6 を含む配線部と、並置した複数の画素 3（発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素等）とを有し、配線部の走査線 5 及び複数のデータ線 6 はそれぞれ導電材料からなり、走査線 5 とデータ線 6 は格子状
20 に直交して、直交する位置で画素 3 に接続している（詳細は図示せず）。前記複数の画素 3 は、それぞれの発光色に対応した有機 EL 素子、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタと駆動トランジスタそれぞれ

れが設けられたアクティブマトリクス方式で駆動されており、走査線 5 から走査信号が印加されると、データ線 6 から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。この様に各赤、緑、青の画素を適宜、並置することによって、フルカラー表示装置を作製した。

- 5 該フルカラー表示装置を駆動することにより、発光輝度、発光効率、発光寿命が高く、さらに駆動電力が抑えられたフルカラー動画表示が得られることを確認することができた。

《実施例 4》

- 実施例 2 で作製した有機 EL 素子 2-1-5 において、P o l y - 1
10 9 を、P o l y - 1 9、P o l y - 4 7、P o l y - 4 8 の混合物に変更した以外は有機 EL 素子 2-1-5 と同様の方法で作製した有機 EL 素子 2-1-5 W を用いた。有機 EL 素子 2-1-5 W の非発光面をガラスケースで覆い、照明装置とした。照明装置は、発光輝度、発光効率の高く、長寿命であり、駆動電力が抑えられた白色光を発する薄型の照
15 明装置として使用することができた。第 5 図は照明装置の概略図で、第 6 図は照明装置の断面図である。有機 EL 素子 1 0 1 をガラスカバー 1 0 2 で覆い、電源線（陽極）1 0 3 と、電源線（陰極）1 0 4 で接続している。1 0 5 は陰極で 1 0 6 は有機 EL 層である。1 0 7 は透明電極付きガラス基板、1 0 8 は封止基板である。なおガラスカバー 1 0 2 内
20 には窒素ガス 1 0 9 が充填され、補水剤 1 1 0 が設けられている。

産業上の利用可能性

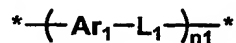
本発明により、高い発光輝度、発光効率、発光寿命を有し、さらに駆

動電力が抑えられた有機エレクトロルミネッセンス素子、およびそれを具備してなる表示装置もしくは照明装置を提供することができた。

請求の範囲

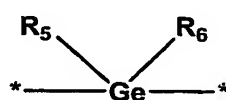
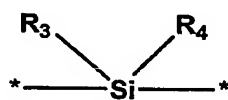
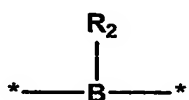
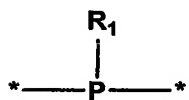
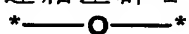
1. 陰極と陽極との間に有機層を少なくとも1層有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層の少なくとも1層に下記一般式(1)で表される繰り返し単位を少なくとも一つ含む重合体を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(1)



- [式中、 Ar_1 は置換基を有していてもよいアリーレン基又はヘテロアリーレン基を表し、ヘテロアリーレン基のヘテロ原子の数は2以下である。 L_1 は下記連結基群1から選ばれるいずれかの連結基を表す。 n_1 は2以上の整数を表す。]

連結基群1



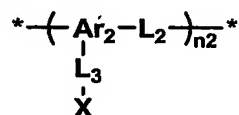
- [$R_1 \sim R_6$ は、各々独立に、アルキル基又はアリール基を表し、 R_3 と R_4 、 R_5 と R_6 は互いに連結して環を形成してもよい。]

2. 前記一般式(1)の Ar_1 は環数が5以下であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

3. 陰極と陽極との間に有機層を少なくとも1層有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層の少なくとも1層に下記一

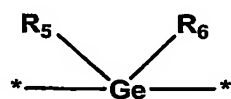
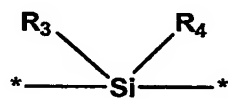
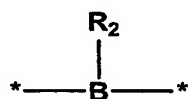
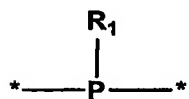
般式 (2) のいずれかで表される繰り返し単位を少なくとも一つ含む重合体を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式 (2)

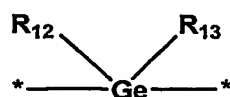
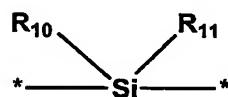
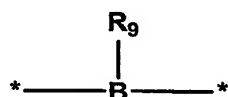
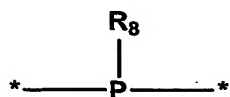
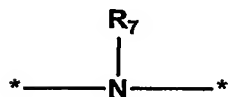


- 5 〔式中、 Ar_2 は置換基を有していてもよいアリーレン基又はヘテロアリーレン基を表し、ヘテロアリーレン基のヘテロ原子の数は2以下である。 L_2 は下記連結基群2から選ばれるいずれかの連結基を表し、 L_3 は、単なる結合手、又は下記連結基群3から選ばれるいずれかの連結基を表し、 X は、正孔輸送性基、電子輸送性基、蛍光性基、リン光性基のいずれかを表す。 n_2 は2以上の整数を表す。〕

連結基群2



連結基群3



- 15 〔 $\text{R}_1 \sim \text{R}_6$ は、各々独立に、アルキル基又はアリール基を表し、 R_3 と R_4 、 R_5 と R_6 は互いに連結して環を形成してもよい。
 $\text{R}_7 \sim \text{R}_{13}$ は、各々独立に、アルキル基又はアリール基を表し、 R_{10} と

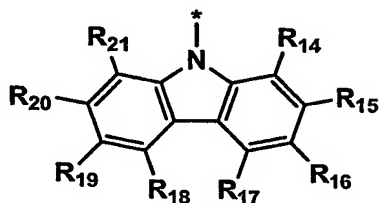
R_{11} 、 R_{12} と R_{13} は互いに連結して環を形成してもよい。]

4. 前記一般式(2)の Ar_2 は環数が5以下であることを特徴とする請求の範囲第3項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

5

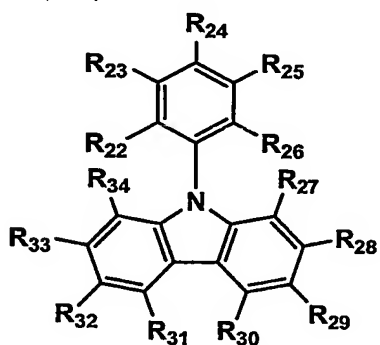
5. 前記正孔輸送性基が下記一般式(3)又は一般式(4)で表される部分構造を有することを特徴とする請求の範囲第3項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(3)



10

一般式(4)



[一般式(3)において、 $R_{14} \sim R_{21}$ は、各々独立に、水素原子、アルキル基、又はシクロアルキル基を表す。また、 $R_{14} \sim R_{21}$ の隣接する基同士で結合して環を形成していてもよい。

15

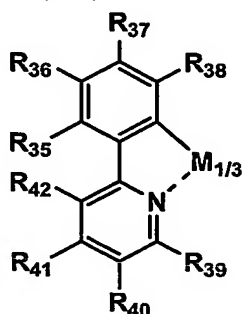
一般式(4)において、 $R_{22} \sim R_{30}$ は、各々独立に、水素原子、アルキル基、又はシクロアルキル基を表し、 $R_{31} \sim R_{34}$ は、各々独立に、水素

原子、結合手、アルキル基、又はシクロアルキル基を表し、 $R_{31} \sim R_{34}$ のいずれか1つが結合手を表す。また、 $R_{22} \sim R_{34}$ の隣接する基同士で結合して環を形成していてもよい。]

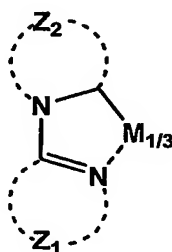
5 6. 前記リン光性基が、有機金属錯体を含む基であることを特徴とする請求の範囲第3項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

7. 前記有機金属錯体が、下記一般式(5)～(8)のいずれかで表される部分構造を有することを特徴とする請求の範囲第6項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

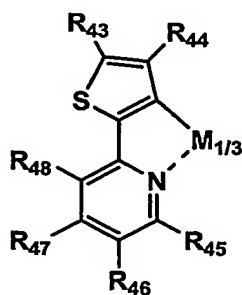
一般式(5)



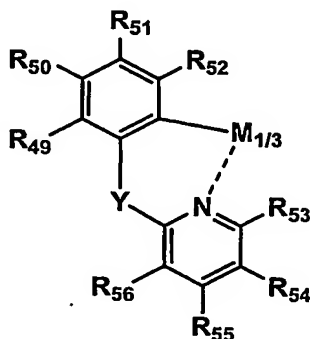
一般式(6)



一般式(7)



一般式(8)



15 [一般式(5)において、 $R_{35} \sim R_{42}$ は、各々独立に、水素原子、結合手、又は置換基を表し、 $R_{35} \sim R_{42}$ の隣接する基同士で結合して環を形

成していてもよい。Mは、金属原子を表す。

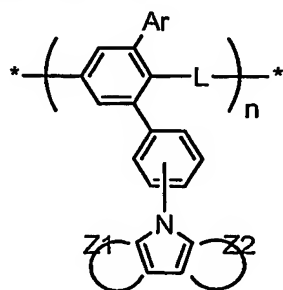
一般式(6)において、 Z_1 、 Z_2 は、各々独立に、炭素原子、窒素原子とともに芳香環を形成するのに必要な原子群を表す。Mは、金属原子を表す。

- 5 一般式(7)において、 $R_{43} \sim R_{48}$ は、各々独立に、水素原子、結合手、又は置換基を表し、 $R_{43} \sim R_{48}$ の隣接する基同士で結合して環を形成していてもよい。Mは、金属原子を表す。

- 一般式(8)において、Yは2価の連結基を表し、 $R_{49} \sim R_{56}$ は、各々独立に、水素原子、結合手、又は置換基を表し、 $R_{49} \sim R_{56}$ の隣接する基同士で結合して環を形成していてもよい。Mは、金属原子を表す。]
- 10

8. 前記一般式(2)のいずれかで表される繰り返し単位が、下記一般式(21)で表される繰り返し単位であることを特徴とする請求の範囲第3項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

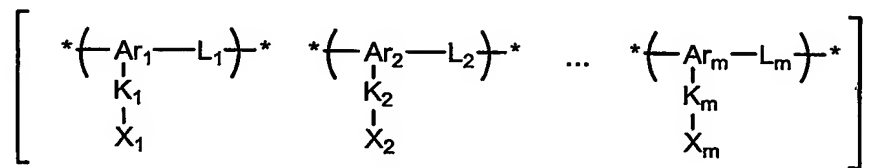
- 15 一般式(21)



[Arは置換基を有しても良いアリーレン基又はヘテロアリーレン基を表す。 Z_1 、 Z_2 は炭素原子、水素原子、窒素原子のいずれかの原子群からなる6員の芳香環を表す。(Z_1 、 Z_2 は異なっても構わない)]

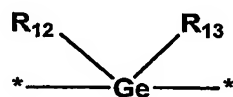
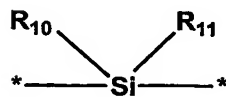
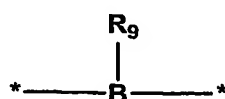
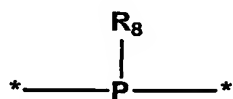
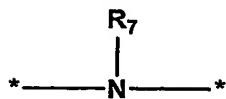
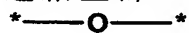
9. 陰極と陽極との間に有機層を少なくとも1層有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層の少なくとも1層に下記一般式(22)で表される共重合体を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

5 一般式(22)



〔式中、 Ar_1 から Ar_m は置換基を有しても良いアリーレン基又はヘテロアリーレン基を表し、 m は2以上の整数を表し、 Ar_1 から Ar_m は全て同じでも、異なっているても良い。ヘテロアリーレン基のヘテロ原子の
10 数は2以下である。 L_1 から L_m は酸素原子又は硫黄原子を表し、全て同じ原子でも、異なった原子でも良い。 K_1 から K_m は単なる結合または下記連結基群3から選ばれるいずれかの連結基を表し、 X_1 から X_m は正孔輸送性基、電子輸送性基、リン光性基のいずれかを表す。〕

連結基群3

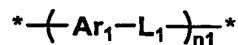


15

〔 $\text{R}_7 \sim \text{R}_{13}$ は、各々独立に、アルキル基又はアリール基を表し、 R_{10} と R_{11} 、 R_{12} と R_{13} は互いに連結して環を形成してもよい。〕

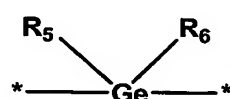
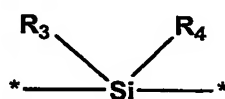
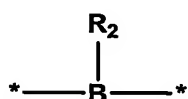
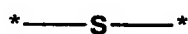
10. 陰極と陽極との間に有機層を少なくとも1層有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層の少なくとも1層に下記一般式(1)、(2)、(21)および(22)で表される重合体のうち、少なくとも2種類以上を混合することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(1)



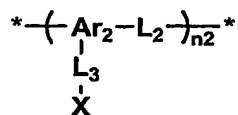
[式中、 Ar_1 は置換基を有していてもよいアリーレン基又はヘテロアリーレン基を表し、ヘテロアリーレン基のヘテロ原子の数は2以下である。 L_1 は下記連結基群1から選ばれるいずれかの連結基を表す。 n_1 は2以上の整数を表す。]

連結基群1



[$\text{R}_1 \sim \text{R}_6$ は、各々独立に、アルキル基又はアリール基を表し、 R_3 と
15 R_4 、 R_5 と R_6 は互いに連結して環を形成してもよい。]

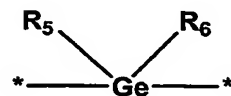
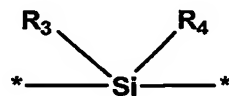
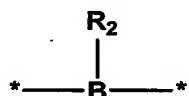
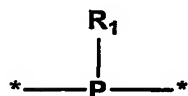
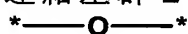
一般式(2)



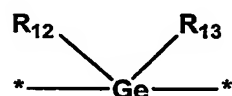
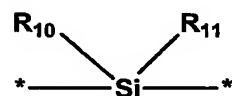
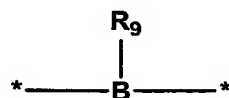
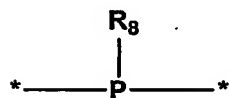
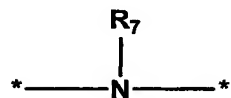
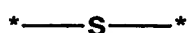
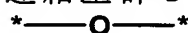
[式中、 Ar_2 は置換基を有していてもよいアリーレン基又はヘテロアリーレン基を表し、ヘテロアリーレン基のヘテロ原子の数は2以下である。 L_2 は下記連結基群2から選ばれるいずれかの連結基を表し、 L_3 は、
20 単なる結合手、又は下記連結基群3から選ばれるいずれかの連結基を表

し、Xは、正孔輸送性基、電子輸送性基、蛍光性基、リン光性基のいずれかを表す。n₂は2以上の整数を表す。]

連結基群 2



5 連結基群 3

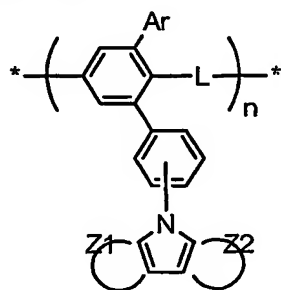


[R₁～R₆は、各々独立に、アルキル基又はアリール基を表し、R₃とR₄、R₅とR₆は互いに連結して環を形成してもよい。

R₇～R₁₃は、各々独立に、アルキル基又はアリール基を表し、R₁₀と

10 R₁₁、R₁₂とR₁₃は互いに連結して環を形成してもよい。]

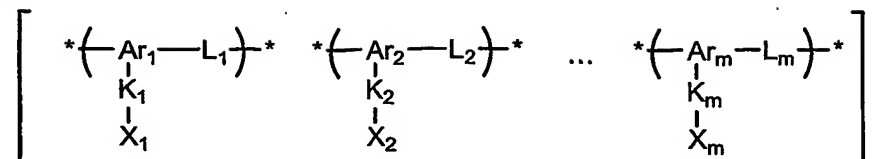
一般式 (21)



[Arは置換基を有しても良いアリーレン基又はヘテロアリーレン基を表す。Z₁、Z₂は炭素原子、水素原子、窒素原子のいずれかの原子群からなる6員の芳香環を表す。(Z₁、Z₂は異なっても構わない)]

15

一般式 (22)



〔式中、 Ar_1 から Ar_m は置換基を有しても良いアリーレン基又はヘテロアリーレン基を表し、 m は 2 以上の整数を表し、 Ar_1 から Ar_m は全
 5 て同じでも、異なっているいても良い。ヘテロアリーレン基のヘテロ原子の数は 2 以下である。 L_1 から L_m は酸素原子又は硫黄原子を表し、全て同じ原子でも、異なった原子でも良い。 K_1 から K_m は単なる結合または上記連結基群 3 から選ばれるいずれかの連結基を表し、 X_1 から X_m は正孔輸送性基、電子輸送性基、リン光性基のいずれかを表す。〕

10

11. 白色に発光することを特徴とする請求の範囲第 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

12. 請求の範囲第 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス
 15 素子を備えたことを特徴とする表示装置。

13. 請求の範囲第 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

20 14. 請求の範囲第 13 項に記載の照明装置と、表示手段として液晶素子と、を備えたことを特徴とする表示装置。

15. 白色に発光することを特徴とする請求の範囲第3項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

16. 請求の範囲第3項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。

17. 請求の範囲第3項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

10 18. 請求の範囲第17項に記載の照明装置と、表示手段として液晶素子と、を備えたことを特徴とする表示装置。

19. 白色に発光することを特徴とする請求の範囲第9項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

15

20. 請求の範囲第9項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。

21. 請求の範囲第9項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

20

22. 請求の範囲第21項に記載の照明装置と、表示手段として液晶素子と、を備えたことを特徴とする表示装置。

23. 白色に発光することを特徴とする請求の範囲第10項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

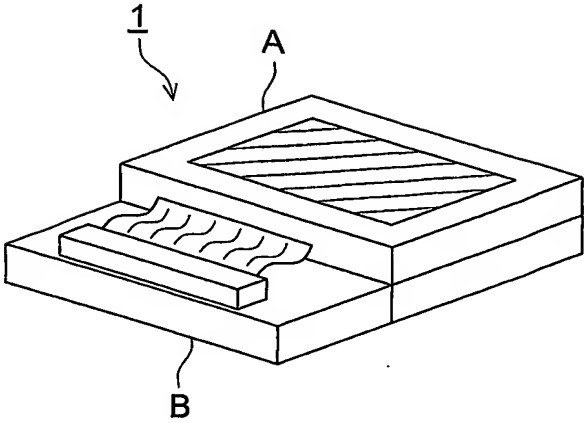
5 24. 請求の範囲第10項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。

25. 請求の範囲第10項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

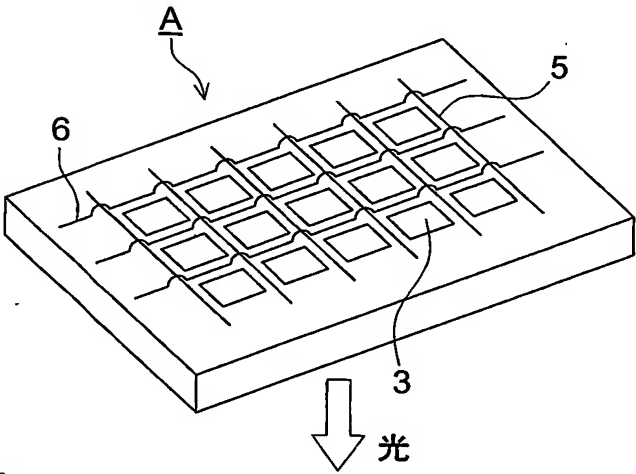
10

26. 請求の範囲第25項記載の照明装置と、表示手段として液晶素子と、を備えたことを特徴とする表示装置。

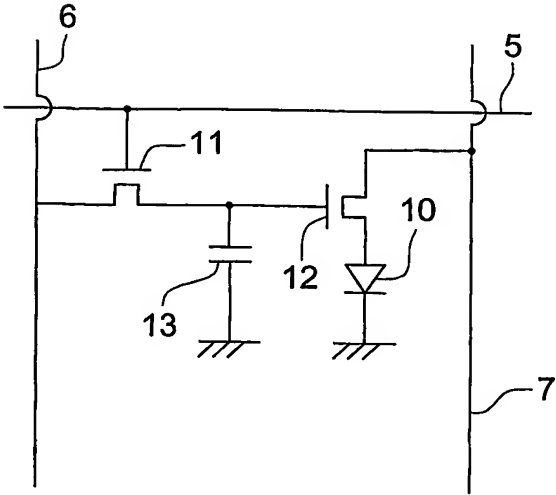
第 1 図



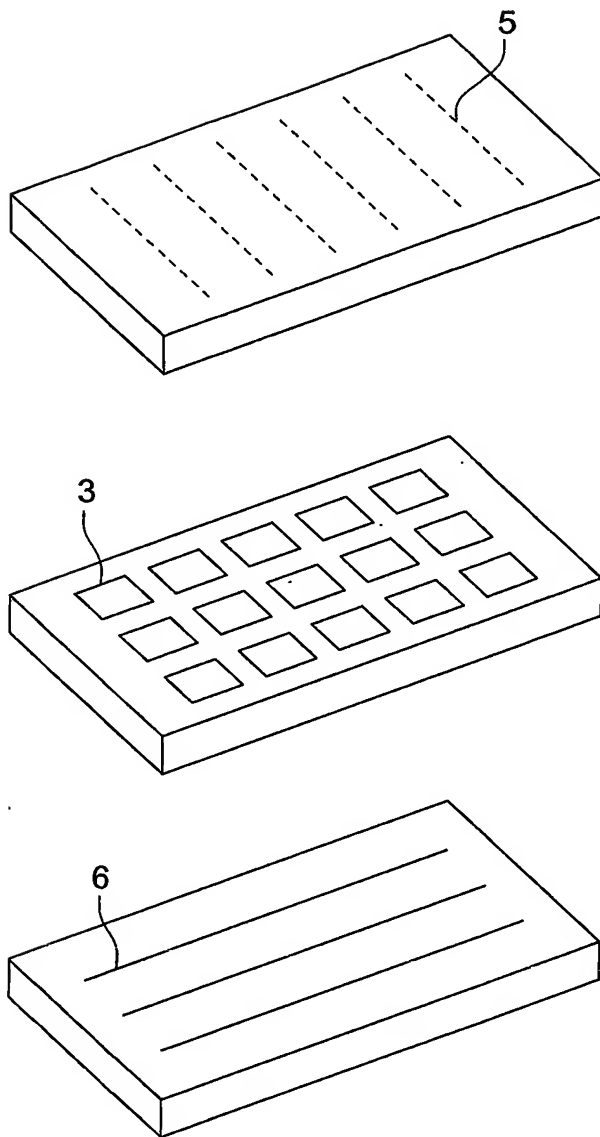
第 2 図



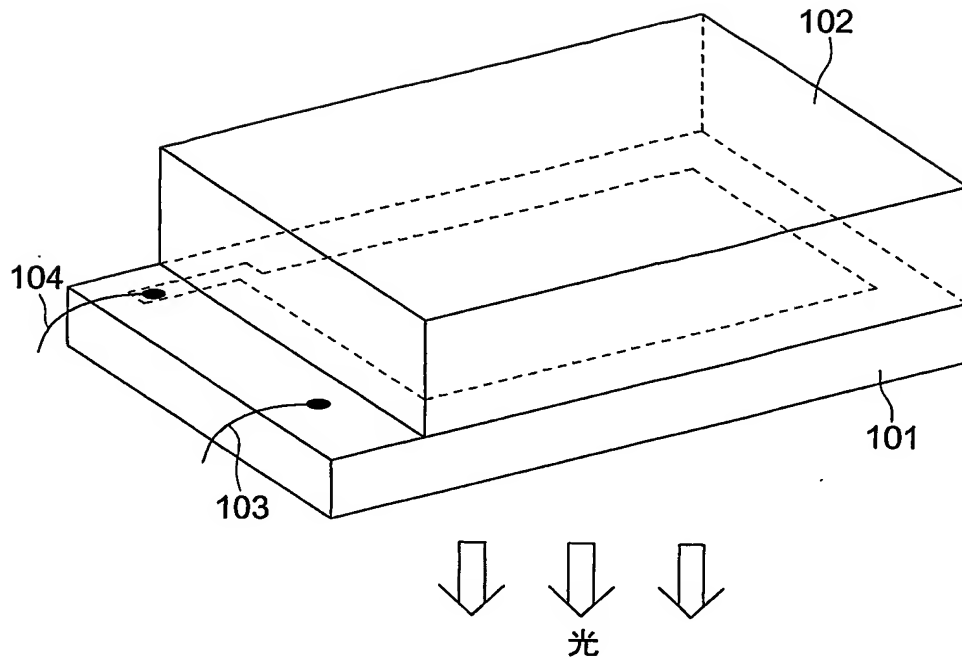
第 3 図



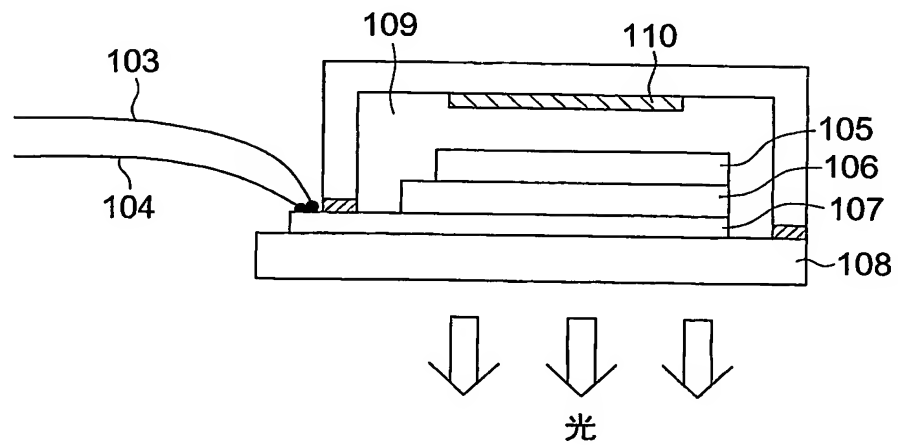
第 4 図



第 5 図



第 6 図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/012042

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ C09K11/06, H05B33/14

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ C09K11/06, H05B33/14, H05B33/22

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP 2000-252076 A (Honda Motor Co., Ltd.), 14 September, 2000 (14.09.00), Claims (Family: none)	1, 11-14 3, 5-7 4, 8
X Y	JP 2000-143812 A (Sumitomo Electric Industries, Ltd.), 26 May, 2000 (26.05.00), Claims; Par. No. [0048] (Family: none)	1, 2, 11-14 3, 5-7
X Y	JP 8-259938 A (Toagosei Co., Ltd.), 08 October, 1996 (08.10.96), Claims (Family: none)	1, 11-14 3, 5-7

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
14 October, 2004 (14.10.04)

Date of mailing of the international search report
09 November, 2004 (09.11.04)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/012042

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 8-231949 A (Osaka Gas Co., Ltd.), 10 September, 1996 (10.09.96), Claims (Family: none)	1, 2, 11-14 3, 5-7
X Y	JP 2002-155274 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 28 May, 2002 (28.05.02), Full text & TW 511394 B & EP 1182245 A1 & US 2002/76577 A1	1, 11-14 3, 5-7
X Y	JP 2001-55447 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 27 February, 2001 (27.02.01), Full text & US 6558819 B1	1, 11-14 3, 5-7
X Y	JP 2001-503077 A (Bayer AG.), 06 March, 2001 (06.03.01), Full text & DE 19644930 A1 & WO 98/11150 A1 & EP 925319 A1	1, 3, 11-17 9, 10, 19-26
X	JP 7-3257 A (Sumitomo Electric Industries, Ltd.), 06 January, 1995 (06.01.95), Full text & TW 421668 B & WO 94/22974 A1 & EP 647694 A1 & WO 95/33014 A1 & EP 712916 A1 & US 5834130 A1 & US 5869199 A	1, 11-14
X	JP 4-202394 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 23 July, 1992 (23.07.92), Full text & DE 69118615 C & EP 470629 A1 & US 5331182 A1	1, 11-14
X	JP 4-93389 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 26 March, 1992 (26.03.92), Full text & DE 699118615 C & EP 470629 A1 & US 5331182 A1	1, 11-14
Y	JP 2003-171659 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 20 June, 2003 (20.06.03), Full text & EP 1245659 A1 & US 2002/193532 A1	3, 5-7, 9, 10, 15-26
Y	WO 03/18653 A1 (Nippon Hoso Kyokai), 06 March, 2003 (06.03.03), Full text & US 2003/91862 A1 & JP 2003-342325 A	5-7, 9, 10, 19-26

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/012042

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,X	JP 2004-220931 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 05 August, 2004 (05.08.04), Claims (Family: none)	1
P,X	JP 2004-152746 A (Air Products and Chemicals Inc.), 27 May, 2004 (27.05.04), & EP 1401035 A2 & US 2004/56255 A1	1
P,X	JP 2004-269697 A (Toyo Ink Manufacturing Co., Ltd.), 30 September, 2004 (30.09.04), Claims (Family: none)	1
P,X	JP 2004-185967 A (Konica Minolta Holdings Kabushiki Kaisha), 02 July, 2004 (02.07.04), Claims (Family: none)	1
P,X	JP 2004-156027 A (Sony Chemicals Corp.), 03 June, 2004 (03.06.04), Claims & WO 2004/35652 A1	1
P,X	JP 2004-2755 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 08 January, 2004 (08.01.04), & WO 2003/84973 A1 & AU 2003/220974 A1	1

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C09K11/06, H05B33/14

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C09K11/06, H05B33/14, H05B33/22

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y A	JP 2000-252076 A (本田技研工業株式会社) 200 0.09.14、特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1, 11-14 3, 5-7 4, 8
X Y	JP 2000-143812 A (住友電気工業株式会社) 200 0.05.26、特許請求の範囲、【0048】 (ファミリーなし)	1, 2, 11-14 3, 5-7
X Y	JP 8-259938 A (東亜合成株式会社) 1996.10.08、特許 請求の範囲 (ファミリーなし)	1, 11-14 3, 5-7

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

14. 10. 2004

国際調査報告の発送日

09.11.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

渡辺 陽子

4V

9279

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	J P 8-231949 A (大阪瓦斯株式会社) 1996. 09. 10、特 許請求の範囲 (ファミリーなし)	1, 2, 11-14 3, 5-7
X Y	J P 2002-155274 A (住友化学工業株式会社) 200 2. 05. 28、全文 & TW 511394 B & EP 1182245 A1 & US 2002/76577 A1	1, 11-14 3, 5-7
X Y	J P 2001-55447 A (富士写真フイルム株式会社) 20 01. 02. 27、全文 & US 6558819 B1	1, 11-14 3, 5-7
X Y	J P 2001-503077 A (パ・イェル・アクチエンゲゼルシャフト) 200 1. 03. 06、全文 & DE 19644930 A1 & WO 98/11150 A1 & EP 925319 A1	1, 3, 11-17 9, 10, 19-26
X	J P 7-3257 A (住友電気工業株式会社) 1995. 01. 06、 全文 & TW 421668 B & WO 94/22974 A1 & EP 647694 A1 & WO 95/33 014 A1 & EP 712916 A1 & US 5834130 A1 & US 5869199 A	1, 11-14
X	J P 4-202394 A (松下電器産業株式会社) 1992. 07. 2 3、全文 & DE 69118615 C & EP 470629 A1 & US 5331182 A1	1, 11-14
X	J P 4-93389 A (松下電器産業株式会社) 1992. 03. 26、 全文 & DE 699118615 C & EP 470629 A1 & US 5331182 A1	1, 11-14
Y	J P 2003-171659 A (住友化学工業株式会社) 200 3. 06. 20、全文 & EP 1245659 A1 & US 2002/193532 A1	3, 5-7, 9, 10, 15-26
Y	WO 03/18653 A1 (日本放送協会) 2003. 03. 06、全文 & US 2003/91862 A1 & JP 2003-342325 A	5-7, 9, 10, 19- 26
PX	J P 2004-220931 A (三菱化学株式会社) 2004. 08. 05、特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1
PX	J P 2004-152746 A (エプロダクツアント ケミカルズ インコ ーポレイテッド) 2004. 05. 27 & EP 1401035 A2 & US 2004/56255 A1	1
PX	J P 2004-269697 A (東洋インキ製造株式会社) 20 04. 09. 30、特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1
PX	J P 2004-185967 A (コニカミノルタホールディン グス株式会社) 2004. 07. 02、特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1
PX	J P 2004-156027 A (ソニーケミカル株式会社) 20 04. 06. 03、特許請求の範囲 & WO 2004/35652 A1	1
PX	J P 2004-2755 A (住友化学工業株式会社) 2004. 01. 08 & WO 2003/84973 A1 & AU 2003/220974 A1	1